

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号  
特開2002-319491  
(P2002-319491A)

(43)公開日 平成14年10月31日(2002. 10. 31)

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード*(参考)
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	B 3 K 0 0 7
C 0 8 F 212/32		C 0 8 F 212/32	4 J 1 0 0
C 0 9 K 11/06	6 6 0	C 0 9 K 11/06	6 6 0
	6 9 0		6 9 0
// (C 0 8 F 212/32		C 0 8 F 226: 06	
審査請求 未請求 請求項の数10 O L (全 106 頁) 最終頁に続く			

(21)出願番号	特願2001-236419(P2001-236419)	(71)出願人	000005201 富士写真フイルム株式会社 神奈川県南足柄市中沼210番地
(22)出願日	平成13年 8 月 3 日(2001. 8. 3)	(72)発明者	岡田 久 神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真 フイルム株式会社内
(31)優先権主張番号	特願2000-254171(P2000-254171)	(72)発明者	伊勢 俊大 神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真 フイルム株式会社内
(32)優先日	平成12年 8 月24日(2000. 8. 24)	(74)代理人	100105647 弁理士 小栗 昌平 (外 4 名)
(33)優先権主張国	日本 (J P)		
(31)優先権主張番号	特願2001-38718(P2001-38718)		
(32)優先日	平成13年 2 月15日(2001. 2. 15)		
(33)優先権主張国	日本 (J P)		
		最終頁に続く	

(54)【発明の名称】 発光素子及び新規重合体子

(57)【要約】

【課題】高輝度、高効率発光可能で耐久性に優れた発光素子を提供する。

【解決手段】基板上に設けた一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む有機化合物層を形成した発光素子において、該有機化合物層の少なくとも1層にヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物とりん光発光性化合物を含有することを特徴とする発光素子。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 基板上に設けた一対の電極間に少なくとも発光層を含む有機化合物層を形成した発光素子において、該有機化合物層の少なくとも1層にヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物とりん光発光性化合物とを含有することを特徴とする発光素子。

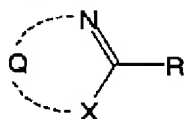
【請求項2】 基板上に設けた一対の電極間に少なくとも発光層を含む有機化合物層を形成した発光素子において、該有機化合物層の少なくとも1層にヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物と有機金属錯体とを含有することを特徴とする発光素子。

【請求項3】 基板上に設けた一対の電極間に少なくとも発光層を含む有機化合物層を形成した発光素子において、該有機化合物層の少なくとも1層にヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物とオルトメタル化錯体とを含有することを特徴とする請求項2に記載の発光素子。

【請求項4】 該ヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物が下記一般式（I）で表される化合物であることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の発光素子。

【化1】

一般式（I）

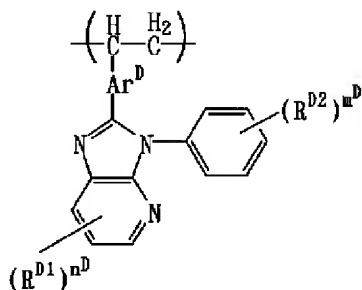


（式中、Rは水素原子または置換基を表す。Xは—O—、—S—、=N—または=N—R<sup>a</sup>（R<sup>a</sup>は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。）を表す。QはNおよびXと結合してヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。）

【請求項5】 下記一般式（D）で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重合体。

【化2】

一般式（D）



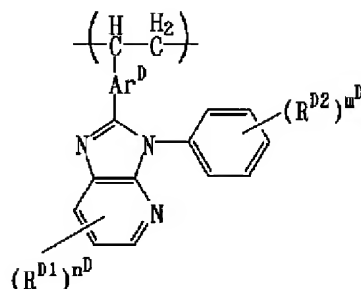
（式中、Ar<sup>D</sup>はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。R<sup>D1</sup>、R<sup>D2</sup>は水素原子または置換基を表す。n<sup>D</sup>は0～3の整数を表し、m<sup>D</sup>は0～5の整数を表す。）

【請求項6】 請求項1～3におけるヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物が下記一般式

（D）で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重合体であることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の発光素子。

【化3】

一般式（D）

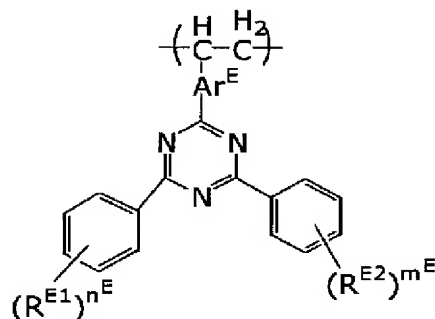


（式中、Ar<sup>D</sup>はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。R<sup>D1</sup>、R<sup>D2</sup>は水素原子または置換基を表す。n<sup>D</sup>は0～3の整数を表し、m<sup>D</sup>は0～5の整数を表す。）

【請求項7】 下記一般式（E）で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重合体。

【化4】

一般式（E）



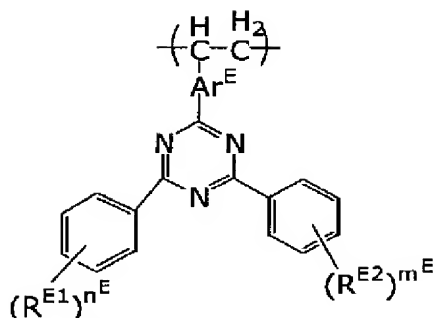
（式中、Ar<sup>E</sup>はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。R<sup>E1</sup>、R<sup>E2</sup>は水素原子または置換基を表す。n<sup>E</sup>およびm<sup>E</sup>は0～5の整数を表す。）

【請求項8】 請求項1～3におけるヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物が下記一般式

（E）で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重合体であることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の発光素子。

【化5】

# 一般式 (E)



(式中、 $Ar^E$ はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 $R^{E1}$ 、 $R^{E2}$ は水素原子または置換基を表す。 $n$ および $m$ は0～5の整数を表す。)

【請求項9】 請求項3におけるオルトメタル化錯体がイリジウム錯体であることを特徴とする請求項4、6および8に記載の発光素子。

【請求項10】 少なくとも発光層を含む有機化合物層が高分子化合物を含有することを特徴とする請求項1～4、6、8および9のいずれかに記載の発光素子。

## 【発明の詳細な説明】

### 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、発光素子材料および発光素子に関するものであり、特に高輝度で発光効率が高く、耐久性に優れる発光素子に関するものである。

### 【0002】

【従来の技術】今日、種々の発光素子に関する研究開発が活発であり、中でも有機電界発光 (EL) 素子は、低電圧で高輝度の発光を得ることができるため、有望な発光素子として注目されている。例えば、有機化合物の蒸着により有機薄膜を形成する発光素子が知られている (アブライド フィジックス レターズ, 51巻, 913頁, 1987年)。この文献に記載された発光素子はトリス (8-ヒドロキシキノリナト) アルミニウム錯体 ( $Alq_3$ ) を電子輸送材料として用い、正孔輸送材料 (アミン化合物) と積層させることにより、従来の単層型素子に比べて発光特性を大幅に向上させている。

【0003】近年、有機EL素子をカラーディスプレイへと適用することが活発に検討されているが、高性能カラーディスプレイを開発する為には、青・緑・赤、それぞれの発光素子の特性を向上する必要がある。発光素子特性向上の手段として、アブライド フィジックス レターズ, 75巻, 4頁, (1999年)に記載のイリジウム錯体からの発光を利用した緑色発光素子が報告されている。本素子は外部量子効率8%を達しており、従来素子の限界といわれていた外部量子効率5%を凌駕しているが、耐久性に問題があり、その改良が望まれていた。

【0004】一方、有機発光素子において高輝度発光を実現しているものは有機物質を真空蒸着によって積層し

ている素子であるが、製造工程の簡略化、加工性、大面積化等の観点から塗布方式による素子作製が望ましい。しかしながら、従来の塗布方式で作製した素子では発光輝度、発光効率の点で蒸着方式で作製した素子に劣っており、高輝度、高効率発光化が大きな課題となっていた。

### 【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明は上記のような実情に鑑みてなされたものであり、高輝度、高効率発光可能で耐久性に優れた発光素子を提供することにある。

### 【0006】

【課題を解決するための手段】この課題は下記によって達成された。

(1) 基板上に設けた一対の電極間に少なくとも発光層を含む有機化合物層を形成した発光素子において、該有機化合物層の少なくとも1層にヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物とりん光発光性化合物とを含有することを特徴とする発光素子。

(2) 基板上に設けた一対の電極間に少なくとも発光層を含む有機化合物層を形成した発光素子において、該有機化合物層の少なくとも1層にヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物と有機金属錯体とを含有することを特徴とする発光素子。

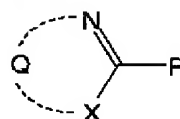
(3) 基板上に設けた一対の電極間に少なくとも発光層を含む有機化合物層を形成した発光素子において、該有機化合物層の少なくとも1層にヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物とオルトメタル化錯体とを含有することを特徴とする(2)に記載の発光素子。

(4) 該ヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物が下記一般式 (I) で表される化合物であることを特徴とする(1)～(3)のいずれかに記載の発光素子。

### 【0007】

#### 【化6】

#### 一般式 (I)



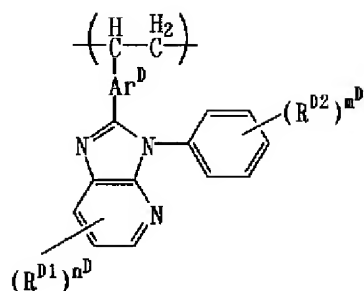
【0008】(式中、 $R$ は水素原子または置換基を表す。 $X$ は $-O-$ 、 $-S-$ 、 $=N-$ または $=N-R^a$  ( $R^a$ は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。))を表す。 $Q$ は $N$ および $X$ と結合してヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。)

(5) 下記一般式 (D) で表される繰返し単位を少なくとも1つ含む重合体。

### 【0009】

#### 【化7】

一般式 (D)



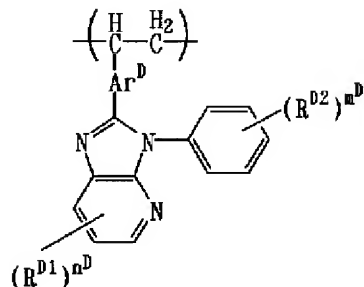
【0010】(式中、 $Ar^D$ はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 $R^{D1}$ 、 $R^{D2}$ は水素原子または置換基を表す。 $n^D$ は0～3の整数を表し、 $m^D$ は0～5の整数を表す。)

(6) (1)～(3)におけるヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物が下記一般式(D)で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重合体であることを特徴とする(1)～(3)のいずれかに記載の発光素子。

【0011】

【化8】

一般式 (D)



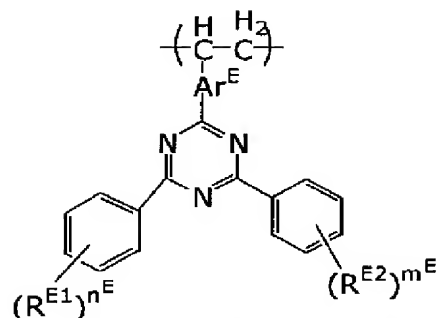
【0012】(式中、 $Ar^D$ はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 $R^{D1}$ 、 $R^{D2}$ は水素原子または置換基を表す。 $n^D$ は0～3の整数を表し、 $m^D$ は0～5の整数を表す。)

(7) 下記一般式(E)で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重合体。

【0013】

【化9】

一般式 (E)



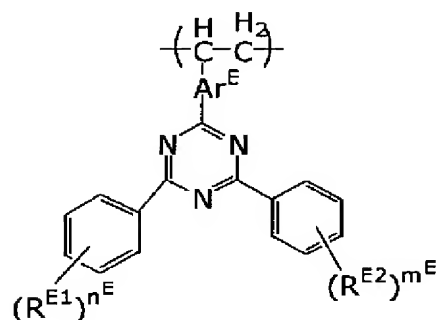
【0014】(式中、 $Ar^E$ はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 $R^{E1}$ 、 $R^{E2}$ は水素原子または置換基を表す。 $n^E$ および $m^E$ は0～5の整数を表す。)

(8) (1)～(3)におけるヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物が下記一般式(E)で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重合体であることを特徴とする(1)～(3)のいずれかに記載の発光素子。

【0015】

【化10】

一般式 (E)



【0016】(式中、 $Ar^E$ はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 $R^{E1}$ 、 $R^{E2}$ は水素原子または置換基を表す。 $n^E$ および $m^E$ は0～5の整数を表す。)

(9) (3)におけるオルトメタル化錯体がイリジウム錯体であることを特徴とする(4)、(6)または(8)に記載の発光素子。

(10) 有機少なくとも発光層を含む有機化合物層が高分子化合物を含有することを特徴とする(1)～

(4)、(6)、(8)および(9)のいずれかに記載の発光素子。

【0017】

【発明の実施の形態】本発明で用いるヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物は、炭素原子、水素原子以外の原子を、環を形成する基本骨格内に2つ以上有する化合物であり、単環または縮環であっても良い。ヘテロ環骨格としては、好ましくはN、O、S原子から選ばれる原子を2つ以上有するものであり、更に好ましくはヘテロ原子のうち少なくとも一つがN原子であ

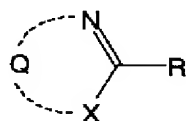
る芳香族ヘテロ環であり、特に好ましくはN原子を骨格内に2つ以上有する芳香族ヘテロ環である。また、ヘテロ原子は縮合位置にあっても、非縮合位置にあってもよい。ヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格としては、例えばピラゾール、イミダゾール、ピラジン、ピリミジン、インダゾール、プリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、フェナントロリン、ピロロイミダゾール、ピロロトリアゾール、ピラゾロイミダゾール、ピラゾロトリアゾール、ピラゾロピリミジン、ピラゾロトリアジン、イミダゾイミダゾール、イミダゾピリダジン、イミダゾピリジン、イミダゾピラジン、トリアゾロピリジン、ベンゾイミダゾール、ナフトイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ナフトオキサゾール、ベンゾチアゾール、ナフトチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン、トリアジンなどが挙げられ、好ましくはイミダゾピリダジン、イミダゾピリジン、イミダゾピラジン、ベンゾイミダゾール、ナフトイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ナフトオキサゾール、ベンゾチアゾール、ナフトチアゾール、トリアジンであり、より好ましくはイミダゾピリジン、イミダゾピラジン、ベンゾイミダゾール、ナフトイミダゾール、トリアジンであり、更に好ましくはイミダゾピリジン、ベンゾイミダゾール、ナフトイミダゾール、トリアジンであり、特に好ましくはイミダゾピリジン、トリアジンである。

【0018】ヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物として好ましくは下記一般式(Ⅰ)で表される化合物である。

【0019】

【化11】

一般式(Ⅰ)



【0020】式中、Rは水素原子または置換基を表す。XはO、S、NまたはN-R<sup>a</sup> (R<sup>a</sup>は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。)を表す。QはNおよびXと結合してヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。また、RとX、RとQは可能な場合には結合して環を形成しても良い。Rで表される置換基として、例えばアルキル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~10であり、例えばメチル、エチル、isopropyl、tert-butyl、n-octyl、n-decyl、n-hexadecyl、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例

えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)、アリール基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニル、p-メチルフェニル、ナフチルなどが挙げられる。)、アミノ基(好ましくは炭素数0~30、より好ましくは炭素数0~24、特に好ましくは炭素数0~20であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジベンジルアミノ、ジフェニルアミノ、ジトリルアミノ、ジナフチルアミノなどが挙げられ、特に好ましくはジフェニルアミノ、ジトリルアミノ、ジナフチルアミノ基である。)、アルコキシ基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数1~10であり、例えばメトキシ、エトキシ、ブトキシ、2-エチルヘキシロキシなどが挙げられる。)、アリールオキシ基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェノキシ、1-ナフトキシ、2-ナフトキシなどが挙げられる。)、ヘテロ環オキシ基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数3~16、特に好ましくは炭素数4~12であり、例えばピリジノオキシ、ピリミジノオキシ、ピリダジノオキシ、ベンズイミダゾリルオキシなどが挙げられる。)、シリルオキシ基(好ましくは炭素数3~40、より好ましくは炭素数3~30、特に好ましくは炭素数3~20であり、例えばトリメチルシリルオキシ、t-ブチルジメチルシリルオキシ、トリフェニルシリルオキシなどが挙げられる。)、アシル基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~20、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ピバロイルなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニル基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。)、アリールオキシカルボニル基(好ましくは炭素数7~30、より好ましくは炭素数7~20、特に好ましくは炭素数7~12であり、例えばフェノキシカルボニルなどが挙げられる。)、アシルオキシ基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシなどが挙げられる。)、アシルアミノ基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数2~30、より好ましくは炭素数2~20、特に好ましくは炭素数2

～12であり、例えばメトキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、アリールオキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数7～30、より好ましくは炭素数7～20、特に好ましくは炭素数7～12であり、例えばフェノキシカルボニルアミノなどが挙げられる。)、スルホニルアミノ基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノなどが挙げられる。)、スルファモイル基(好ましくは炭素数0～30、より好ましくは炭素数0～20、特に好ましくは炭素数0～12であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。)、カルバモイル基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。)、アルキルチオ基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメチルチオ、エチルチオなどが挙げられる。)、アリールチオ基(好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニルチオなどが挙げられる。)、ヘテロ環チオ基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばピリジルチオ、2-ベンゾイミダゾリルチオ、2-ベンゾオキサゾリルチオ、2-ベンズチアゾリルチオなどが挙げられる。)、スルホニル基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられる。)、スルフィニル基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニルなどが挙げられる。)、ウレイド基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイドなどが挙げられる。)、リン酸アミド基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばジエチルリン酸アミド、フェニルリン酸アミドなどが挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子(例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ基、カルボキシ基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～12であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、具体的には例えばイミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジル、モル

ホリノ、ベンゾオキサゾリル、ベンゾイミダゾリル、ベンズチアゾリル、カルバゾリル、アゼビニルなどが挙げられる。)、シリル基(好ましくは炭素数3～40、より好ましくは炭素数3～30、特に好ましくは炭素数3～24であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリルなどが挙げられる。))などが挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよい。また置換基が二つ以上ある場合は、同じでも異なってもよい。また、可能な場合には連結して環を形成してもよい。

【0021】Rで表される置換基として好ましくは、脂肪族炭化水素基、アリール基およびヘテロ環基であり、より好ましくはアリール基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアリール基、5または6員の芳香族ヘテロ環基であり、特に好ましくはアリール基、N、S、O原子の少なくとも一つを含む5または6員の芳香族ヘテロ環基であり、最も好ましくはアリール基である。

【0022】XはO、S、NまたはN-R<sup>a</sup>を表す。R<sup>a</sup>は水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。R<sup>a</sup>で表される脂肪族炭化水素基は直鎖、分岐または環状のアルキル基(好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、特に好ましくは炭素数1～8であり、例えばメチル、エチル、i s o -プロピル、t e r t -ブチル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル等が挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～12、特に好ましくは炭素数2～8であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニル等が挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～12、特に好ましくは炭素数2～8であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニル等が挙げられる。)であり、より好ましくはアルキル基である。

【0023】R<sup>a</sup>で表されるアリール基は、単環または縮環のアリール基であり、好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、更に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニル、2-メチルフェニル、3-メチルフェニル、4-メチルフェニル、2-メトキシフェニル、3-トリフルオロメチルフェニル、ペンタフルオロフェニル、1-ナフチル、2-ナフチル等が挙げられる。R<sup>a</sup>で表されるヘテロ環基は、単環または縮環のヘテロ環基(好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、更に好ましくは炭素数2～10のヘテロ環基)であり、好ましくは窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子の少なくとも一つを含む芳香族ヘテロ環基である。R<sup>a</sup>で表されるヘテロ環基の具体例としては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフェン、セレノフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、ピリミジン、トリアゾール、ト

リアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、アクリジン、フェナントリン、フェナジン、テトラゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン、カルバゾール、アゼピン等が挙げられ、好ましくは、フラン、チオフエン、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、キノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリンであり、より好ましくはフラン、チオフエン、ピリジン、キノリンであり、更に好ましくはキノリンである。

【0024】 $R^a$ で表される脂肪族炭化水素基、アリール基、ヘテロ環基は置換基を有していてもよく、置換基としては一般式 (I) における R で表される基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。 $R^a$ として好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、より好ましくはアリール基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアリール基である。

【0025】Xとして好ましくはO、N、 $N-R^a$ であり、より好ましくはN、 $N-R^a$ であり、特に好ましくはN、 $N-Ar$  ( $Ar$ はアリール基 (好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、更に好ましくは炭素数6~12のアリール基)、芳香族ヘテロ環基 (好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、更に好ましくは炭素数2~10の芳香族ヘテロ環基) であり、好ましくはアリール基である。) である。

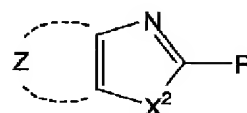
【0026】QはNおよびXと結合してヘテロ環を形成するに必要な原子群をあらわす。Qで形成されるヘテロ環として好ましくは芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは5~8員の芳香族ヘテロ環であり、更に好ましくは5または6員環の芳香族ヘテロ環である。Qで形成されるヘテロ環の具体例としては、イミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、セレナゾール環、テルラゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、オキサトリアゾール環、チアトリアゾール環、ピリミジン環、ピリダジン環、ピラジン環、トリアジン環、テトラジン環等が挙げられ、好ましくはイミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、トリアジン環であり、より好ましくはイミダゾール環、オキサゾール環、トリアジン環であり、更に好ましくはイミダゾール環、トリアジン環である。Qで形成されるヘテロ環は更に他の環と縮合環を形成してもよく、また、置換基を有していてもよい。置換基としては例えばRで表される基として挙げたものが適用できる。Qの置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、ア

ルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族ヘテロ環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族ヘテロ環基である。一般式 (I) で表される化合物のうち、好ましくは下記一般式 (II) またはトリアジン化合物 (後述) である。

【0027】

【化12】

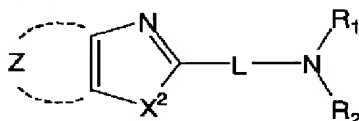
一般式 (II)



【0028】式中、Rは一般式 (I) におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $X^2$ は-O-、-S-または $=N-R^a$ を表す。 $R^a$ は一般式 (I) におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $X^2$ として好ましくは-O-、 $=N-R^a$ であり、より好ましくは $=N-R^a$ であり、特に好ましくは $=N-Ar$  ( $Ar$ はアリール基 (好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、更に好ましくは炭素数6~12のアリール基)、芳香族ヘテロ環基 (好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、更に好ましくは炭素数2~10の芳香族ヘテロ環基) であり、好ましくはアリール基である。) である。Zは芳香族環を形成するに必要な原子群を表す。Zで形成される芳香族環は芳香族炭化水素環、芳香族ヘテロ環のいずれでもよく、具体例としては、例えばベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、トリアジン環、ピロール環、フラン環、チオフエン環、セレノフェン環、テルロフェン環、イミダゾール環、チアゾール環、セレナゾール環、テルラゾール環、チアジアゾール環、オキサジアゾール環、ピラゾール環などが挙げられ、好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環であり、より好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環であり、更に好ましくはベンゼン環、ピリジン環であり、特に好ましくはピリジン環である。Zで形成される芳香族環は更に他の環と縮合環を形成してもよく、また置換基を有していてもよい。置換基としては例えば一般式

(I)におけるRで表される基として挙げたものが適用でき、Zで形成される芳香族環の置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリール基、ア

一般式 (A-II)



【0031】一般式 (A-II) におけるX²は一般式 (I) におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Zは一般式 (II) におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。R₁およびR₂は、同一でも異なってもよく、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。また、可能な場合はR₁とR₂、R₁とL、R₂とL、X²とLはそれぞれ互いに連結して環を形成しても良い。

【0032】R₁およびR₂で表される脂肪族炭化水素基は、直鎖、分岐または環状のアルキル基（好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、更に好ましくは炭素数1～12であり、例えば、メチル、エチル、i s o-ブチル、n-ブチル、t e r t-ブチル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。）、アルケニル基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、更に好ましくは炭素数2～12であり、例えば、ビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニル等が挙げられる。）、アルキニル基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、更に好ましくは炭素数2～12であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。）であり、好ましくはアルキル基、アルケニル基であり、より好ましくはメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、アリル基、R₁、R₂がLと結合して縮合環（例えばユロリジン環、ピロール環、アゼピン環等）を形成したものである。

【0033】R₁およびR₂で表されるアリール基は、単環または縮環のアリール基であり、好ましくは炭素数6～30の単環～4員環のアリール基（例えばフェニル、ナフチル、アントリル、フェナントリル、ピレニル等が挙げられる。）であり、より好ましくは炭素数6～20のフェニル基または炭素数10～24のナフチル基であ

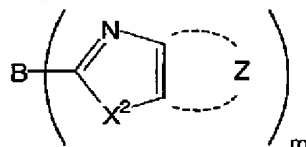
ルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族ヘテロ環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族ヘテロ環基である。

【0029】一般式 (II) で表される化合物のうち、更に好ましくは下記一般式 (A-II) または (B-II) で表される化合物である。

【0030】

【化13】

一般式 (B-II)



り、更に好ましくは炭素数6～12のフェニル基または炭素数10～16のナフチル基である。

【0034】R₁およびR₂で表されるヘテロ環基は、窒素原子、酸素原子、硫黄原子またはセレン原子を少なくとも一つ含む3ないし10員環の飽和もしくは不飽和のヘテロ環基であり、これらは単環であっても良いし、更に他の環と縮合環を形成していても良い。ヘテロ環基として好ましくは、窒素原子、酸素原子、硫黄原子またはセレン原子を少なくとも一つ含む3ないし10員環の芳香族ヘテロ環基であり、より好ましくは5または6員環の芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくは、窒素原子または硫黄原子を含む5または6員環の芳香族ヘテロ環基である。ヘテロ環の具体例としては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフエン、セレノフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、ピリミジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、テトラゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン等が挙げられる。ヘテロ環として好ましくは、チオフエン、トリアゾール、オキサゾール、ピリジン、トリアジン、キノリンであり、より好ましくはチオフエン、ピリジン、トリアジン、キノリンであり、更に好ましくはチオフエンである。

【0035】R₁、R₂で表される脂肪族炭化水素基、アリール基およびヘテロ環基は置換基を有していてもよく、置換基としては、一般式 (I) のRで表される基として挙げたものが適用でき、また好ましい範囲も同様で



ある。

【0036】 $R_1$ 、 $R_2$ として好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、より好ましくはアリール基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアリール基である。

【0037】 $L$ は連結基を表す。 $L$ で表される連結基として好ましくは、単結合、C、N、O、S、Se、Te、Si、Geなどで形成される連結基であり、より好ましくは単結合、アルキレン、アルケニレン、アルキニレン、アリーレン、二価のヘテロ環（好ましくは芳香族ヘテロ環であり、より好ましくはアゾール、チオフェン、フラン環から形成される芳香族ヘテロ環などである。）およびNとこれらの組み合わせから成る基であり、更に好ましくはアリーレン、二価の芳香族ヘテロ環およびNとこれらの組み合わせから成る基であり、更に好ましくはアリーレン、二価の芳香族ヘテロ環であり、特に好ましくはフェニレン、チエニレンおよびNとこれらの組み合わせから成る基であり、最も好ましくはフェニレンである。また、可能な場合には $L$ は $R_1$ 、 $R_2$ と連結して環を形成しても良い。

【0038】 $L$ で表される連結基は置換基を有していてもよく、置換基としては例えば $R$ で表される基として挙げたものが適用できる。 $L$ の置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン

原子、シアノ基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基である。

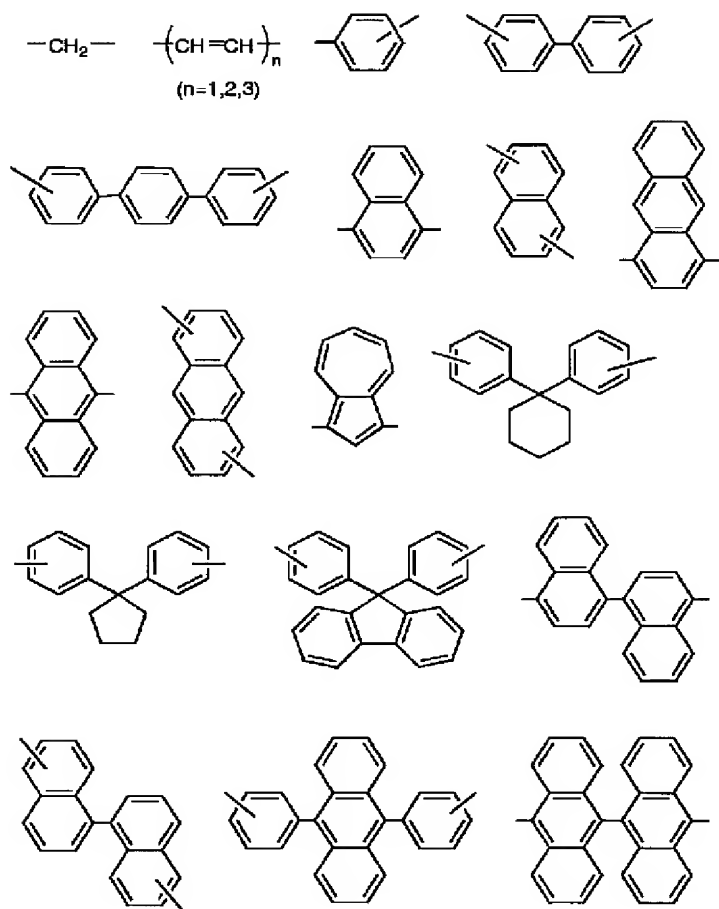
【0039】一般式（B-II）における $X^2$ は一般式（I I）におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $Z$ は一般式（II）におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $B$ は連結基を表す。 $B$ で表される連結基として好ましくは、C、N、O、S、Si、Geなどで形成される連結基である。 $B$ として好ましくは炭素原子、アルキレン、アルケニレン、アルキニレン、アリーレン、多価の芳香環（炭素原子のみからなる芳香環であってもヘテロ環であってもよく、ヘテロ環として好ましくはアゾール、チオフェン、フラン環から形成される芳香族ヘテロ環などである。）およびNとこれらの組み合わせから成る基であり、更に好ましくはアリーレン、三価の芳香環およびNとこれらの組み合わせから成る基であり、更に好ましくは三価の芳香環およびNとこれらの組み合わせから成る基であり、特に好ましくは、1, 3, 5-ベンゼントリイル基である。

【0040】一般式（B-III）において、 $m$ は2以上の整数を表し、好ましくは2ないし8、より好ましくは2ないし6、更に好ましくは2ないし4であり、特に好ましくは2または3であり、最も好ましくは3である。

【0041】 $B$ （ $L$ を含む）で表される連結基の具体例としては、単結合の他、例えば以下のものが挙げられる。

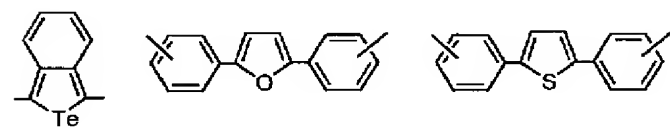
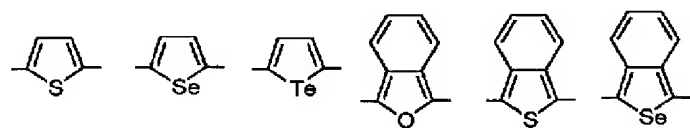
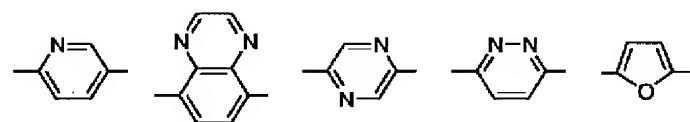
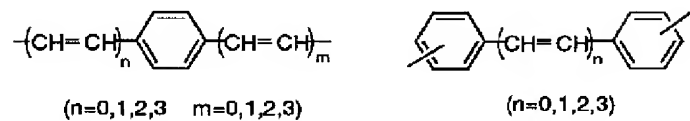
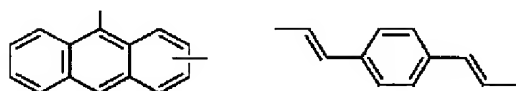
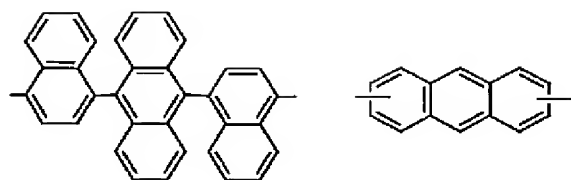
【0042】

【化14】



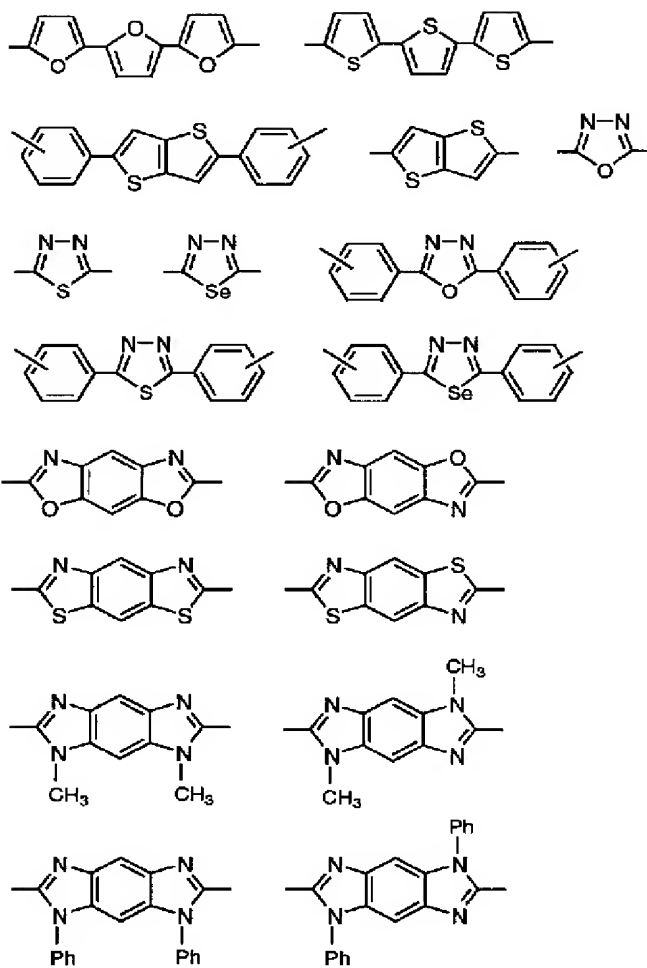
【 0 0 4 3 】

【 化 1 5 】



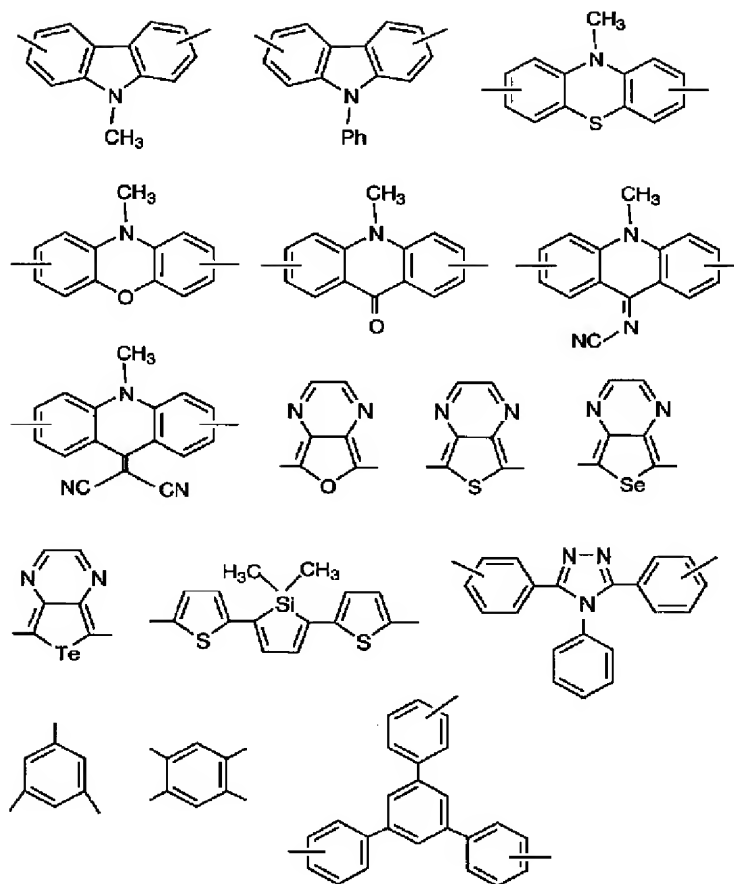
【 0 0 4 4 】

【 化 1 6 】

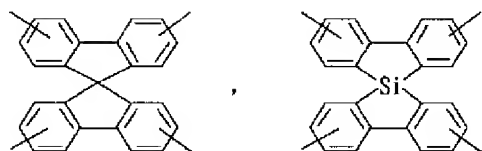


【 0045】

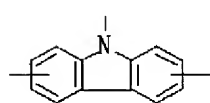
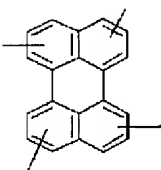
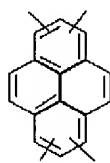
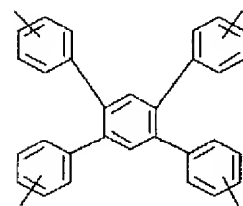
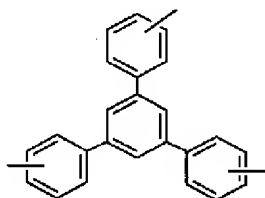
【 化 17】

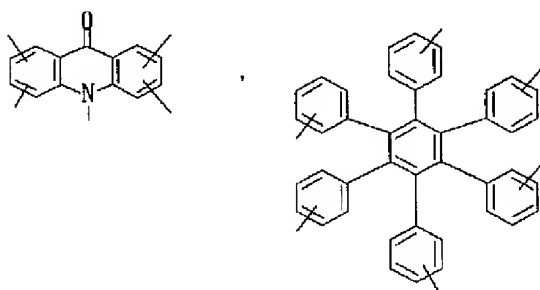
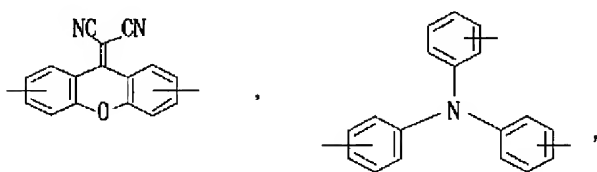
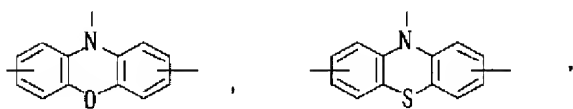
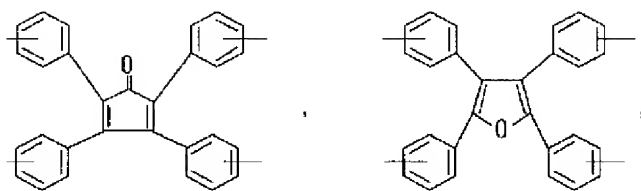


【0046】  
【化18】



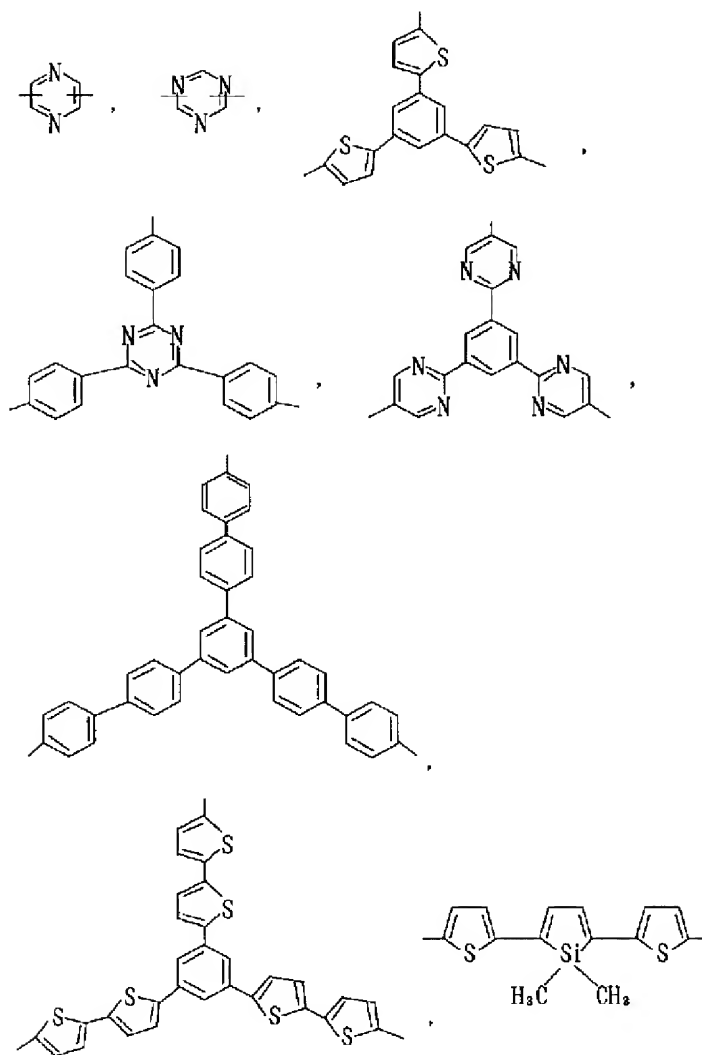
【0047】  
【化19】





【0048】

【化20】

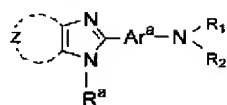


【 0 0 4 9 】 一般式 ( A - II ) で表される化合物のうち、更に好ましくは一般式 ( A - III ) で表される化合物である。

【 0 0 5 0 】

【 化 2 1 】

一般式 ( A - III )



【 0 0 5 1 】 式中、Zは一般式 ( II ) におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $R_1$ 、 $R_2$ は一般式 ( A - II ) におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $R^a$ は一般式 ( I ) におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $Ar^a$ はアリーレンまたは二価の芳香族ヘテロ環基を表し、これらの基は一般式 ( A - II ) におけるLで説明した好ましいアリーレン、二価の芳香族ヘテロ環基と同義である。 $Ar^a$ で表されるアリーレンまたは二価の芳香族

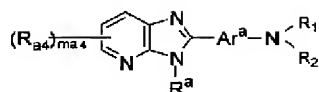
族ヘテロ環基は置換基を有していてもよく、置換基としては例えばRで表される基として挙げたものが適用できる。 $Ar^a$ の置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基である。

【 0 0 5 2 】 一般式 ( A - II ) で表される化合物のうち、更に好ましくは一般式 ( A - IV ) または ( A - V ) で表される化合物である。

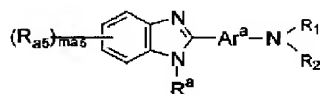
【 0 0 5 3 】

【 化 2 2 】

一般式 (A-IV)



一般式 (A-V)



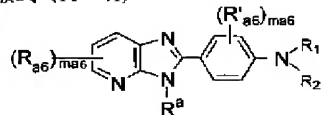
【0054】式中、 $R_1$ 、 $R_2$ は一般式 (A-II) におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $R^a$ は一般式 (I) におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $Ar^a$ は一般式 (A-III) におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $R_{a4}$ および $R_{a5}$ は、それぞれ置換基を表し、置換基としては一般式 (I) における $R$ で表される基として挙げたものが適用でき、 $R_{a4}$ 、 $R_{a5}$ として好ましくは、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基である。また、可能な場合には置換基同士が連結して環を形成していても良い。 $m_{a4}$ は0ないし3の整数を表し、好ましくは0ないし2、より好ましくは0または1、更に好ましくは0である。 $m_{a5}$ は0ないし4の整数を表し、好ましくは0ないし3、より好ましくは0ないし2、更に好ましくは0または1、特に好ましくは0である。

【0055】一般式 (A-II) で表される化合物のうち、更に好ましくは一般式 (A-VI) または一般式 (A-VII) で表される化合物である。

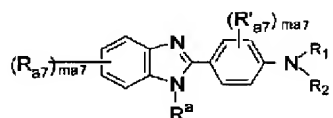
【0056】

【化23】

一般式 (A-VI)



一般式 (A-VII)



【0057】式中、 $R_1$ 、 $R_2$ はそれぞれ一般式 (A-I) におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $R^a$ は一般式 (I) におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $R_{a6}$ は一般式

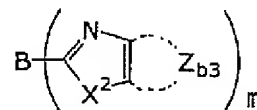
(A-IV) における $R_{a4}$ と同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $R_{a7}$ は一般式 (A-V) における $R_{a5}$ と同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $m_{a6}$ は一般式 (A-IV) における $m_{a4}$ と同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $m_{a7}$ は一般式 (A-V) における $m_{a5}$ と同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $R'_{a6}$ および $R'_{a7}$ は、それぞれ置換基を表し、置換基としては一般式 (I) における $R$ で表される基として挙げたものが適用でき、 $R'_{a6}$ および $R'_{a7}$ として好ましくは、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基である。また、可能な場合には置換基同士が連結して環を形成していても良い。 $m'_{a6}$ および $m'_{a7}$ は0ないし4の整数を表し、好ましくは0ないし3、より好ましくは0ないし2、更に好ましくは0または1、特に好ましくは0である。一般式 (A-II) で表される化合物のうち、特に好ましくは一般式 (A-VI) で表される化合物である。

【0058】一般式 (B-II) で表される化合物のうち、より好ましくは一般式 (B-III) で表される化合物である。

【0059】

【化24】

一般式 (B-III)



【0060】式中、 $B$ 、 $X^2$ および $m$ は、それぞれ一般式 (B-II) におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $Z_{b3}$ は芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。 $Z_{b3}$ で形成される芳香族ヘテロ環として好ましくは5または6員の芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは5または6員の含窒素芳香族ヘテロ環であり、更に好ましくは6員の含窒素芳香族ヘテロ環である。 $Z_{b3}$ で形成される芳香族ヘテロ環の具体例としては、例えばフラン、チオフェン、ピラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、チアゾール、オキサゾール、イソチアゾール、イソオキサゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、セレナゾール、テルラゾールなどが挙げられ、好ましくはピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジンであり、より好ましくはピリジン、ピラジンであり、更に好ましくはピ



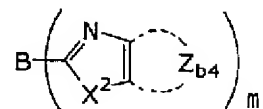
リジンである。Z<sub>b3</sub>で形成される芳香族ヘテロ環は更に他の環と縮合環を形成してもよく、また置換基を有してもよい。置換基としては一般式(I)のRで表される基として挙げたものが適用でき、また好ましい範囲も同様である。

【0061】一般式(B-II)で表される化合物のうち、更に好ましくは一般式(B-IV)で表される化合物である。

【0062】

【化25】

一般式(B-IV)



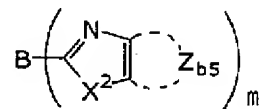
【0063】式中、B、X²およびmは、それぞれ一般式(B-II)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Z<sub>b4</sub>は含窒素ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。Z<sub>b4</sub>で形成される含窒素芳香族ヘテロ環として好ましくは5または6員の含窒素芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは6員の含窒素芳香族ヘテロ環である。Z<sub>b4</sub>で形成される含窒素芳香族ヘテロ環の具体例としては、例えばピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、チアゾール、オキサゾール、イソチアゾール、イソオキサゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、セレナゾール、テルラゾールなどが挙げられ、好ましくはピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジンであり、より好ましくはピリジン、ピラジンであり、更に好ましくはピリジンである。Z<sub>b4</sub>で形成される含窒素芳香族ヘテロ環は更に他の環と縮合環を形成してもよく、また置換基を有してもよい。置換基としては一般式(I)のRで表される基として挙げたものが適用でき、また好ましい範囲も同様である。

【0064】一般式(B-II)で表される化合物のうち、より好ましくは一般式(B-V)で表される化合物である。

【0065】

【化26】

一般式(B-V)



【0066】式中、B、X²およびmは、それぞれ一般式(B-II)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Z<sub>b5</sub>は6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。Z<sub>b5</sub>で形成される

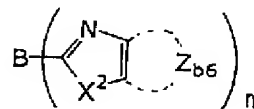
6員の含窒素芳香族ヘテロ環の具体例としては、例えばピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジンなどが挙げられ、好ましくはピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジンであり、より好ましくはピリジン、ピラジンであり、更に好ましくはピリジンである。Z<sub>b5</sub>で形成される6員の含窒素芳香族ヘテロ環は更に他の環と縮合環を形成してもよく、また置換基を有してもよい。置換基としては一般式(I)のRで表される基として挙げたものが適用でき、また好ましい範囲も同様である。

【0067】一般式(B-II)で表される化合物のうち、更に好ましくは一般式(B-VI)で表される化合物である。

【0068】

【化27】

一般式(B-VI)



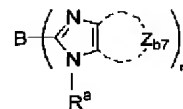
【0069】式中、BおよびX²は、それぞれ一般式(B-II)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Z<sub>b6</sub>は一般式(B-V)におけるZ<sub>b5</sub>と同義であり、また好ましい範囲も同様である。nは2ないし8の整数を表し、好ましくは2ないし6、より好ましくは2ないし4であり、更に好ましくは2または3であり、特に好ましくは3である。

【0070】一般式(B-II)で表される化合物のうち、更に好ましくは一般式(B-VII)で表される化合物である。

【0071】

【化28】

一般式(B-VII)



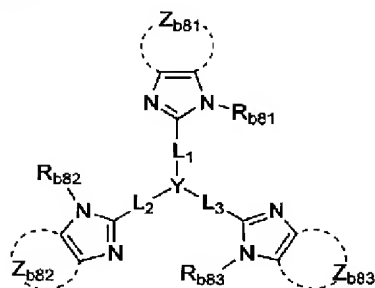
【0072】式中、Bは一般式(B-II)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。Z<sub>b7</sub>は一般式(B-V)におけるZ<sub>b5</sub>と同義であり、また好ましい範囲も同様である。nは一般式(B-VI)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。R²は一般式(I)におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。

【0073】一般式(B-II)で表される化合物のうち、更に好ましくは一般式(B-VIII)で表される化合物である。

【0074】

【化29】

## 一般式 (B-VII)



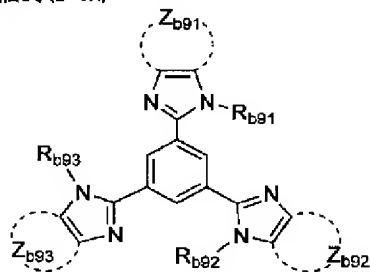
【0075】式中、 $R_{b81}$ 、 $R_{b82}$ および $R_{b83}$ は、それぞれ一般式 (I) における $R^a$ と同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $Z_{b81}$ 、 $Z_{b82}$ および $Z_{b83}$ は、それぞれ一般式 (B-V) における $Z_{b5}$ と同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $L_1$ 、 $L_2$ および $L_3$ は、それぞれ一般式 (A-II) における $L$ と同義である。 $L_1$ 、 $L_2$ 、 $L_3$ として好ましくは、単結合、アリーレン、二価の芳香族ヘテロ環およびこれらの組合わせから成る連結基であり、より好ましくは単結合、ベンゼン、ナフタレン、アントラセン、ピリジン、ピラジン、チオフェン、フラン、オキサゾール、チアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾール、トリアゾールおよびこれらの組合わせから成る連結基であり、更に好ましくは単結合、ベンゼン、チオフェンおよびこれらの組合わせから成る連結基であり、特に好ましくは単結合、ベンゼンおよびこれらの組合わせから成る連結基であり、最も好ましくは単結合である。 $L_1$ 、 $L_2$ 、 $L_3$ は置換基を有してもよく、置換基としては一般式 (I) の $R$ で表される基として挙げたものが適用でき、また好ましい範囲も同様である。

【0076】 $Y$ は窒素原子または1, 3, 5-ベンゼントリイル基を表すが、後者は2, 4, 6位に置換基を有してもよく、置換基としては例えばアルキル基、アリール基、ハロゲン原子などが挙げられる。 $Y$ として好ましくは窒素原子または無置換1, 3, 5-ベンゼントリイル基であり、より好ましくは無置換1, 3, 5-ベンゼントリイル基である。一般式 (B-II) で表される化合物のうち、特に好ましくは下記一般式 (B-IX) で表される化合物である。

【0077】

【化30】

## 一般式 (B-IX)

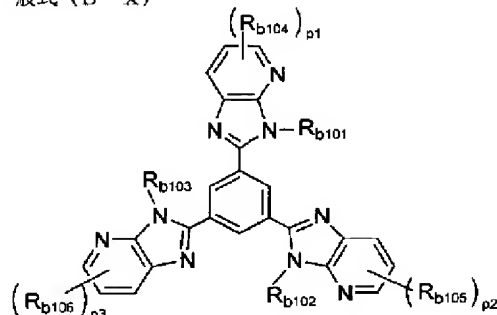


【0078】式中、 $R_{b91}$ 、 $R_{b92}$ および $R_{b93}$ は、それぞれ一般式 (I) における $R^a$ と同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $Z_{b91}$ 、 $Z_{b92}$ および $Z_{b93}$ は、それぞれ一般式 (B-V) における $Z_{b5}$ と同義であり、また好ましい範囲も同様である。一般式 (B-II) で表される化合物のうち、最も好ましくは下記一般式 (B-X) で表される化合物である。

【0079】

【化31】

## 一般式 (B-X)



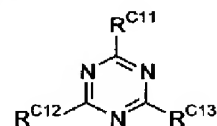
【0080】式中、 $R_{b101}$ 、 $R_{b102}$ および $R_{b103}$ は、それぞれ一般式 (I) における $R^a$ と同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $R_{b104}$ 、 $R_{b105}$ および $R_{b106}$ は、それぞれ置換基を表し、置換基としては一般式 (I) の $R$ で表される基として挙げたものが適用でき、また好ましい範囲も同様である。また可能な場合、置換基同士が連結して環を形成してもよい。 $p_1$ 、 $p_2$ および $p_3$ は、それぞれ0ないし3の整数を表し、好ましくは0ないし2、より好ましくは0または1、更に好ましくは0である。

【0081】一般式 (I) で表される化合物のうち、もう一つの好ましい化合物はトリアジン化合物であり、さらに好ましくは下記一般式 (C-II) で表される化合物である。

【0082】

【化32】

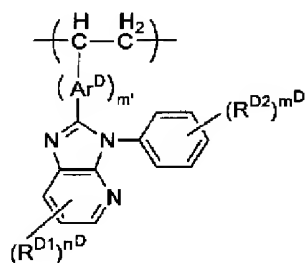
## 一般式 (C-II)



【0083】 $R^{C11}$ 、 $R^{C12}$ および $R^{C13}$ は、一般式 (A-II) における $R_1$ 、 $R_2$ と同義であり、また好ましい範囲も同様である。 $R^{C11}$ 、 $R^{C12}$ および $R^{C13}$ で表される基はさらに置換基を有していてもよく、置換基としては一般式 (I) における $R$ として挙げたものが適用でき、置換基として好ましくは脂肪族炭化水素基、アリール基、ヘテロ環基、アミノ基、ハロゲン原子であり、より好ましくはアルキル基、アミノ基である。

【0084】本発明で用いるヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物は金属錯体を形成したものでよい。また、本発明で用いるヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物は、上記骨格がポリマー主鎖に接続された高分子量化合物（好ましくは質量平均分子量1000～5000000、より好ましくは5000～2000000、更に好ましくは10000～1000000）もしくは、本発明の上記骨格を主鎖に持つ高分子量化合物（好ましくは質量平均分子量100

一般式 (D)



【0087】 $Ar^D$ および $Ar^E$ はアリーレン基または二価の芳香族ヘテロ環基を表し、好ましくはアリーレン基である。 $R^{D1}$ 、 $R^{D2}$ 、 $R^{E1}$ 、 $R^{E2}$ はそれぞれ置換基を表し、置換基としては一般式 (I) のRとして挙げた基が適用でき、好ましくは、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基であり、より好ましくは水素原子、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、特に好ましくは水素原子、アルキル基である。 $n^D$ は0～3の整数を表し、好ましくは0～1であ

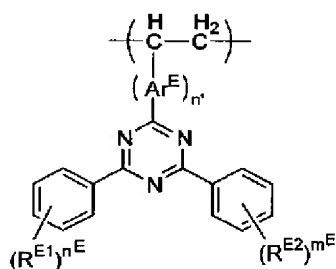
0～5000000、より好ましくは5000～2000000、更に好ましくは10000～1000000)であっても良い。

【0085】上記、高分子量化合物として好ましくは、下記一般式 (D) または下記一般式 (E) で表される繰り返し単位を含む重合体である。

【0086】

【化33】

一般式 (E)



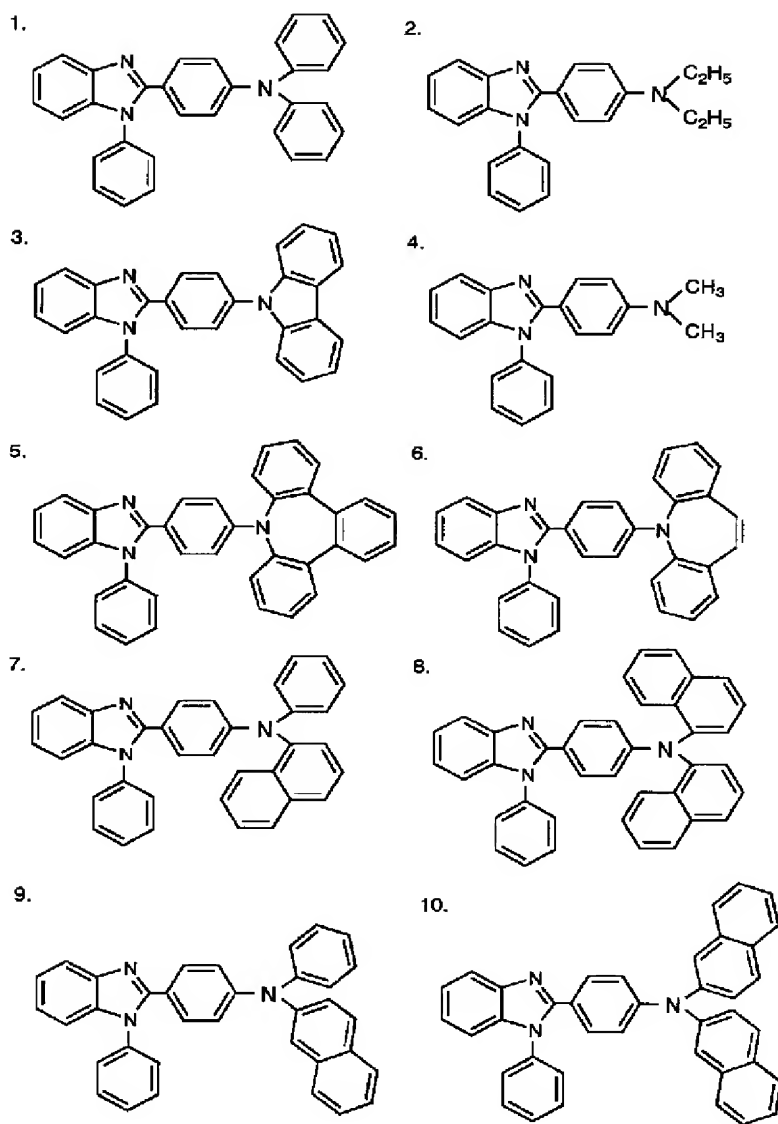
る。 $m^D$ 、 $n^E$ 、 $m^E$ は0～5の整数を表し、好ましくは0～1である。 $m'$  および  $n'$  はそれぞれ0または1を表し、好ましくは1である。

【0088】一般式 (D) または一般式 (E) で表される繰り返し単位を有する重合体は、ホモポリマーであってもよく、他のモノマーとの共重合体であってもよい。またランダム共重合体であってもよく、ブロック共重合体であってもよい。

【0089】以下に本発明で用いるヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0090】

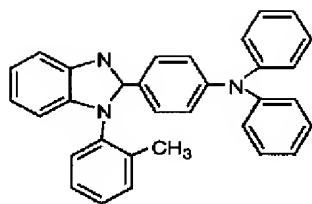
【化34】



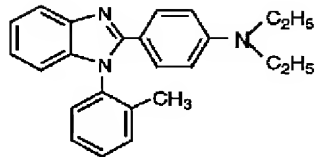
【0091】

【化35】

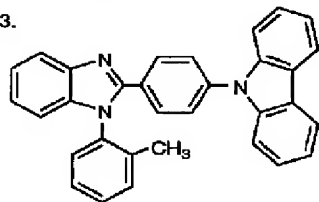
11.



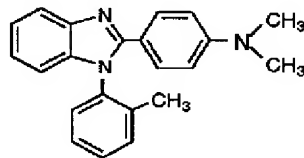
12.



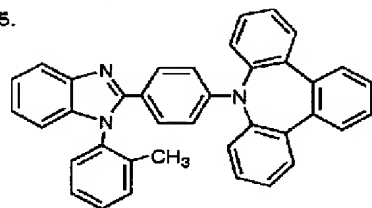
13.



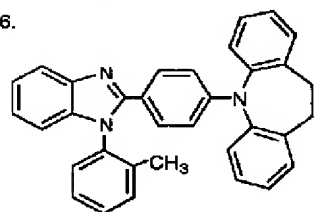
14.



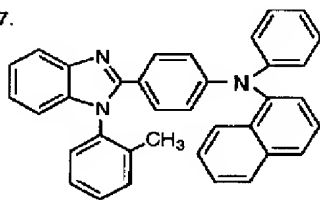
15.



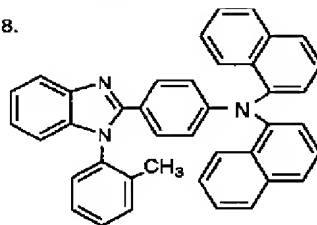
16.



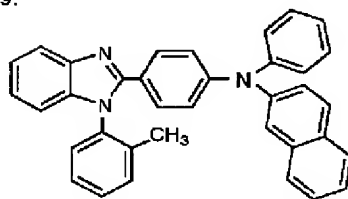
17.



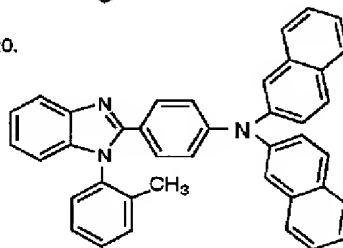
18.



19.



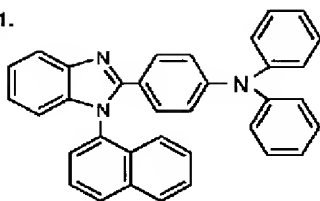
20.



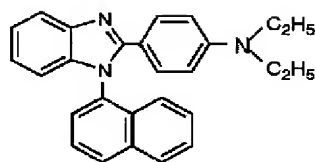
【0092】

【化36】

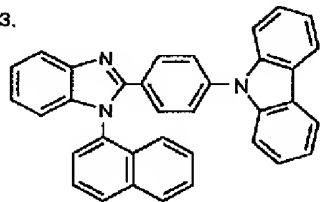
21.



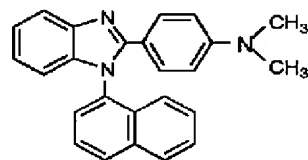
22.



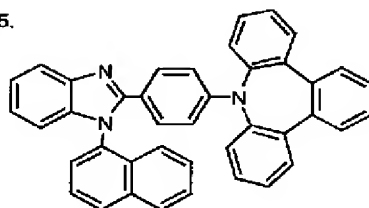
23.



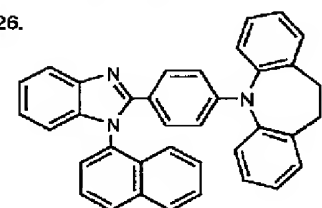
24.



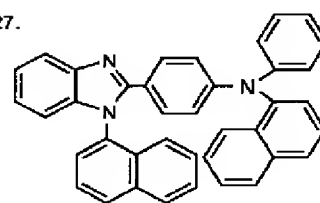
25.



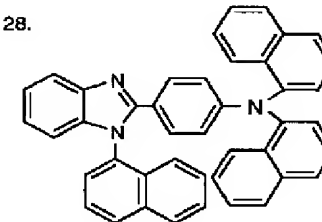
26.



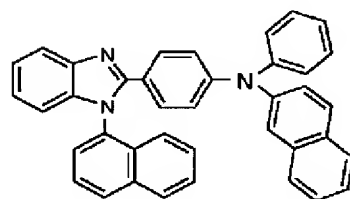
27.



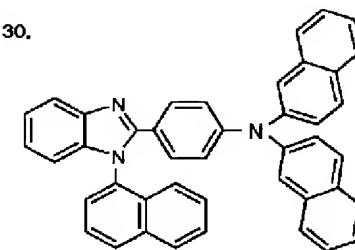
28.



29.

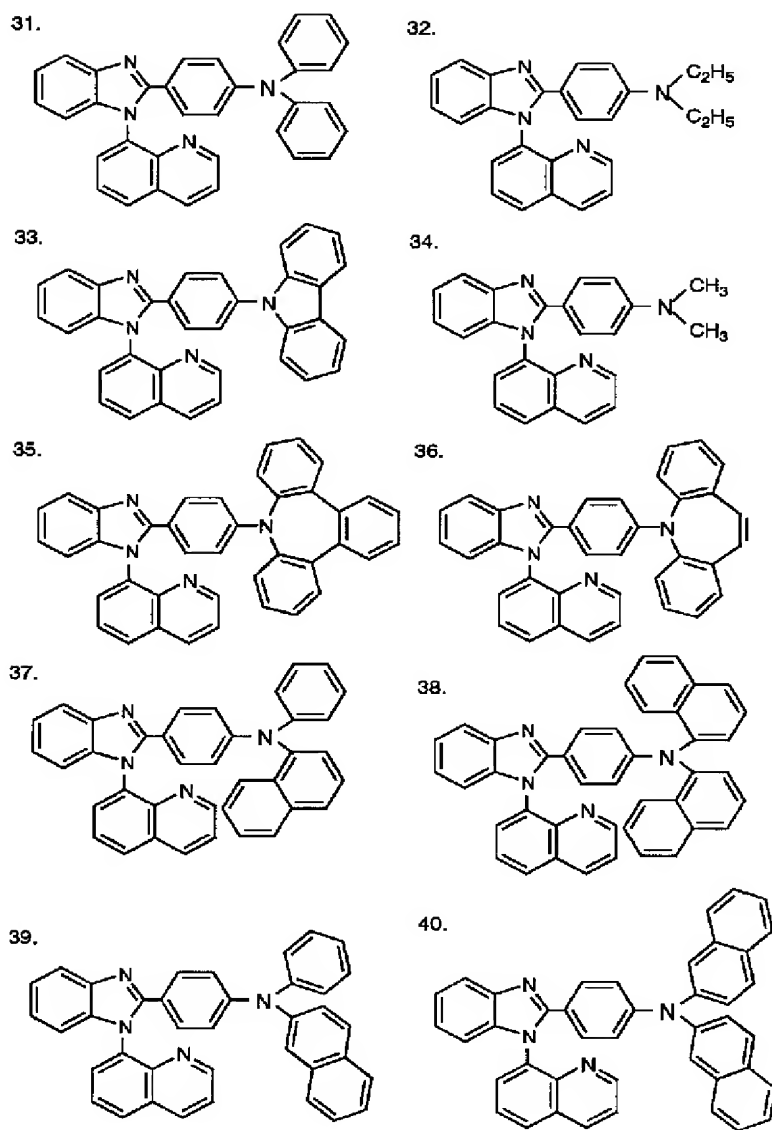


30.



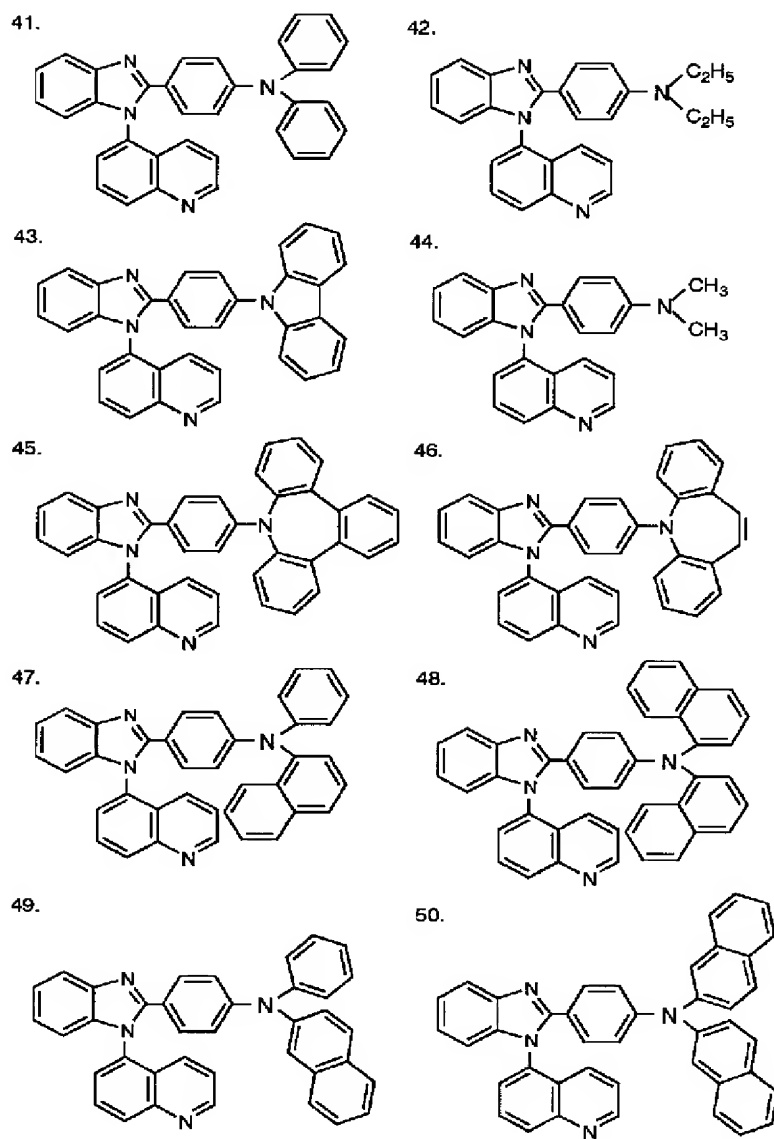
【0093】

【化37】



【0094】

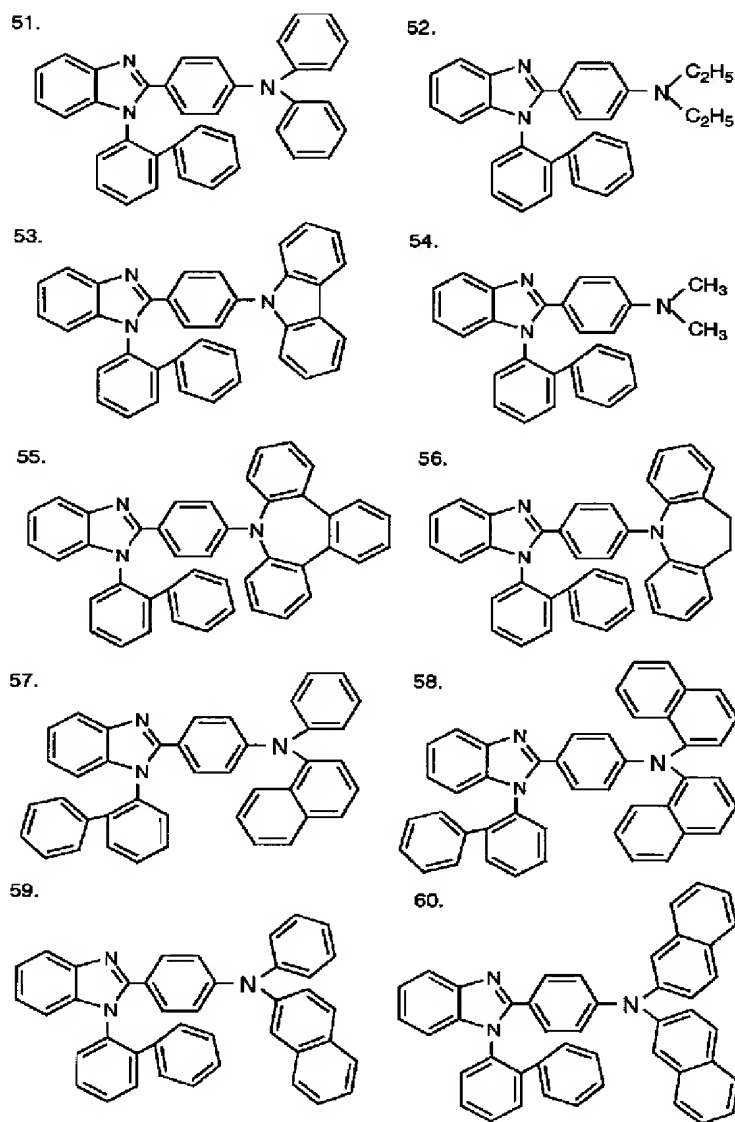
【化38】



【0095】

【化39】

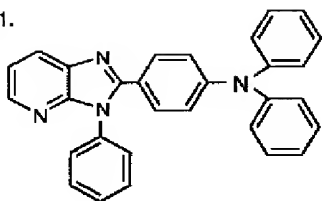




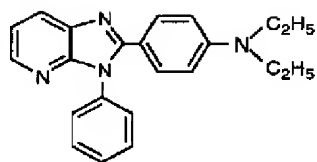
【0096】

【化40】

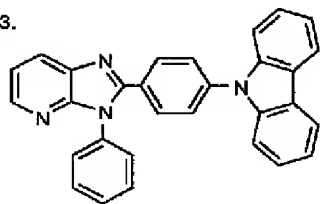
61.



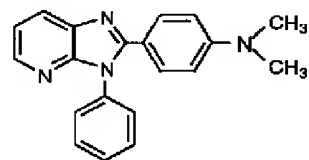
62.



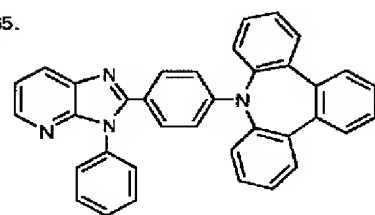
63.



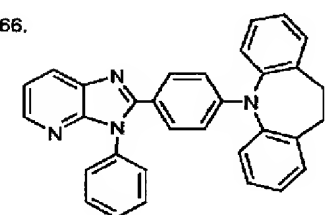
64.



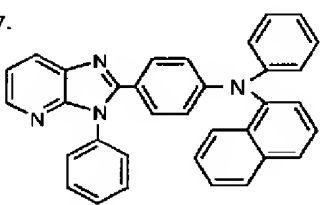
65.



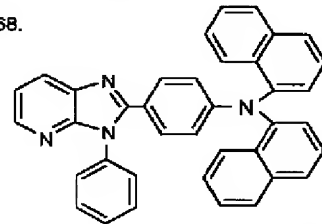
66.



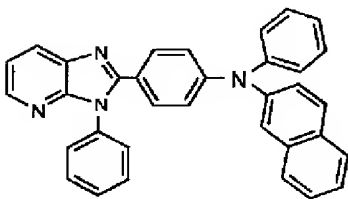
67.



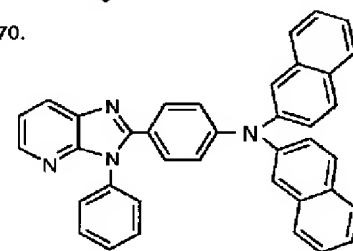
68.



69.



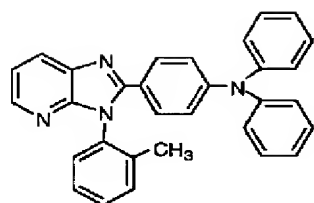
70.



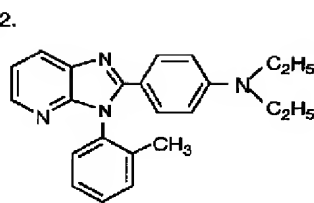
【0097】

【化41】

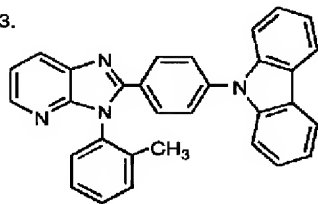
71.



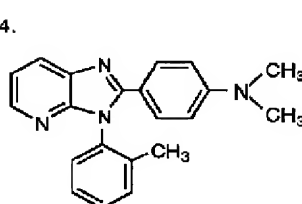
72.



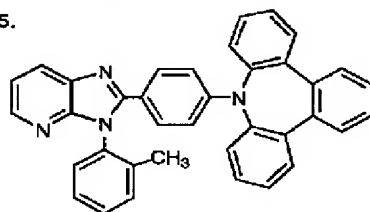
73.



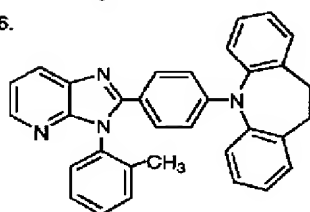
74.



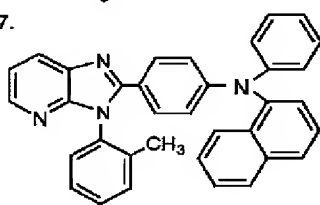
75.



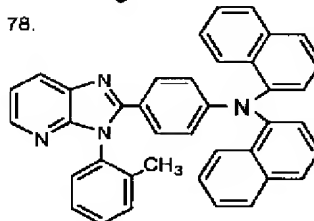
76.



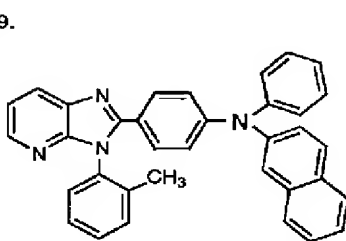
77.



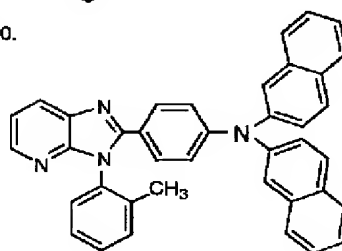
78.



79.



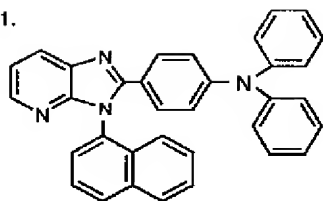
80.



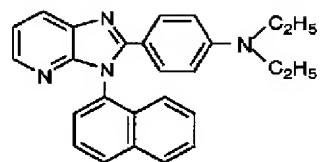
【0098】

【化42】

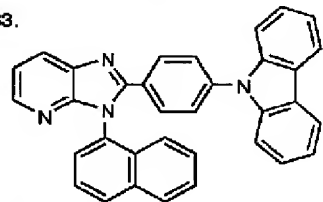
81.



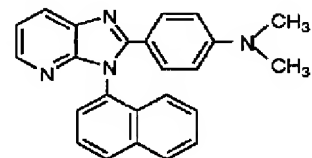
82.



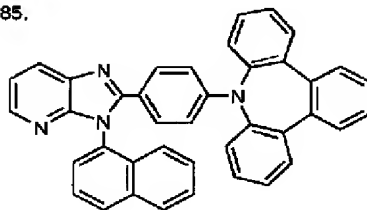
83.



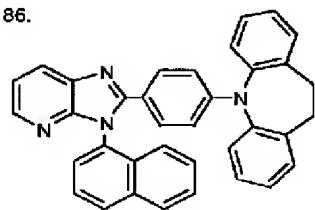
84.



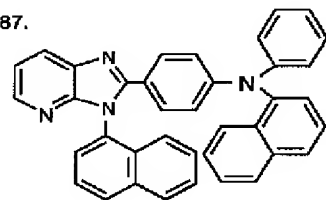
85.



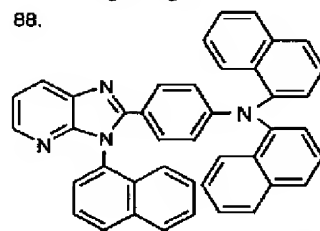
86.



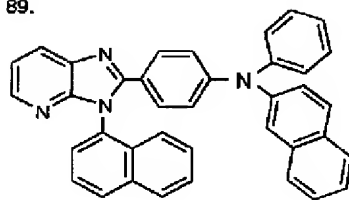
87.



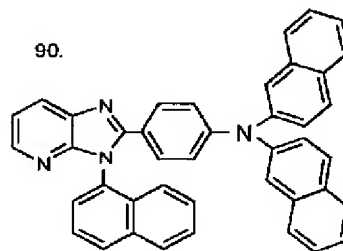
88.



89.



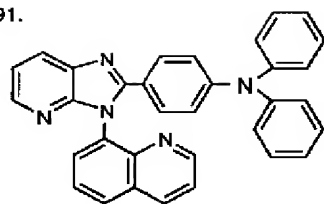
90.



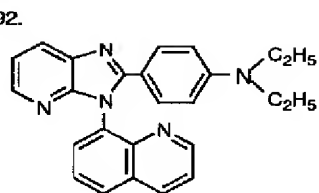
【0099】

【化43】

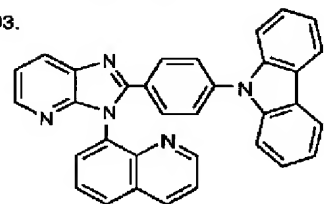
91.



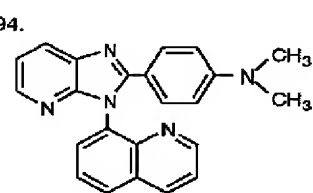
92.



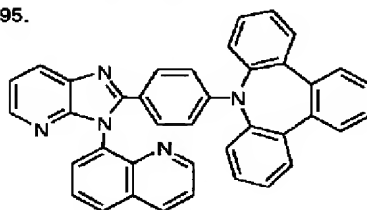
93.



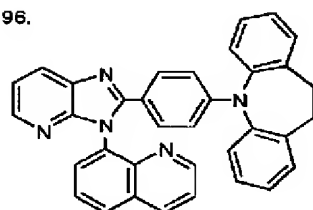
94.



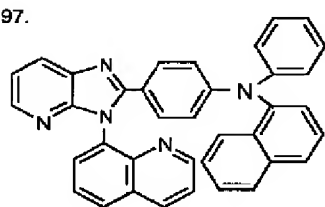
95.



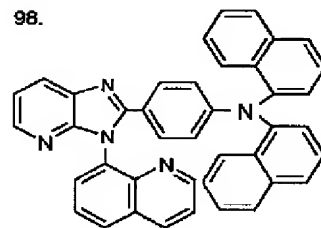
96.



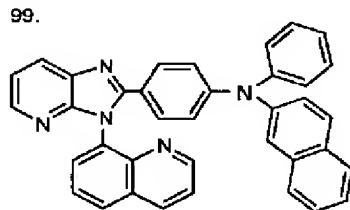
97.



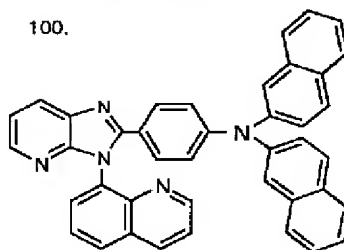
98.



99.

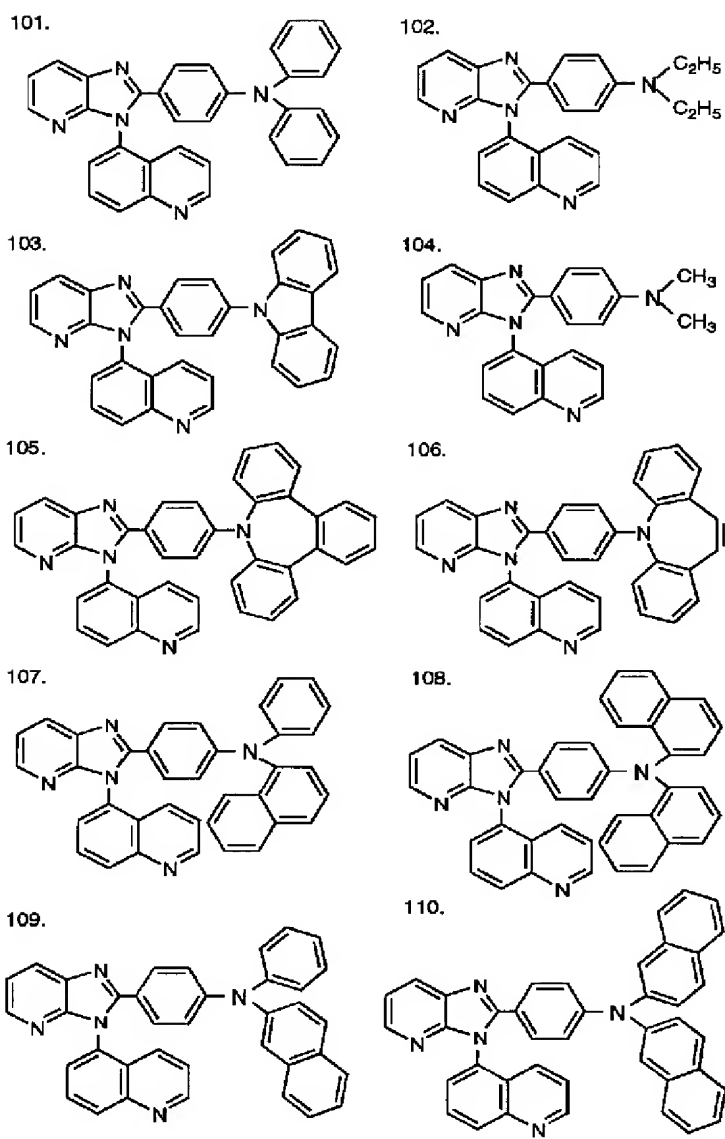


100.



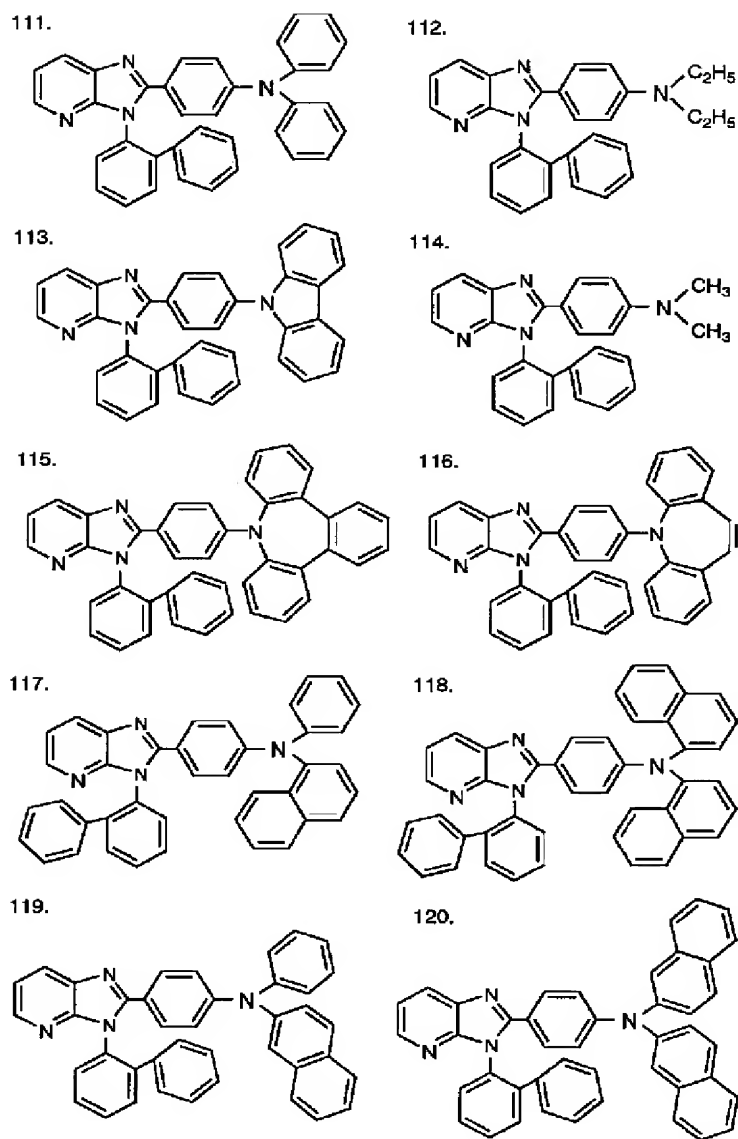
【0100】

【化44】



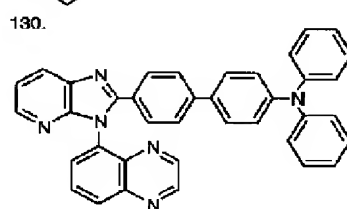
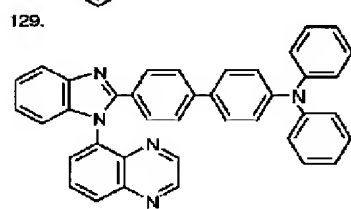
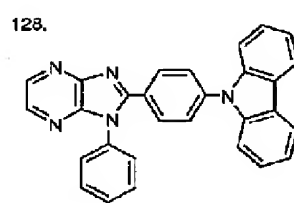
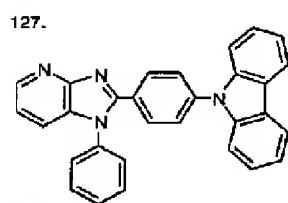
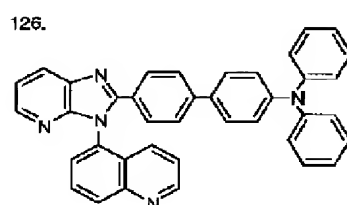
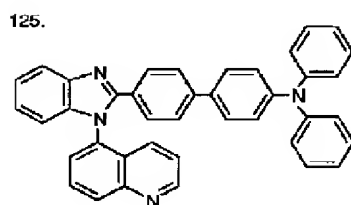
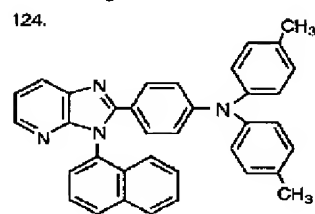
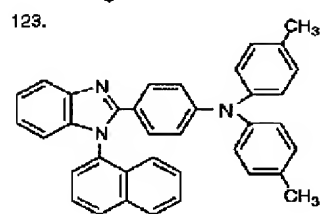
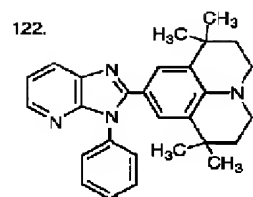
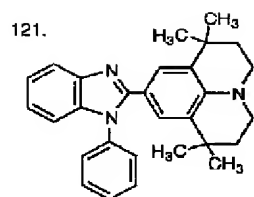
【0101】

【化45】



【0102】

【化46】

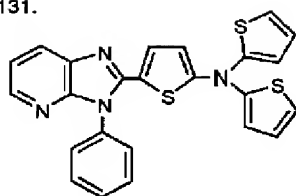


【0103】

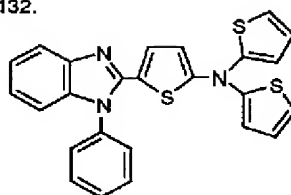
【化47】



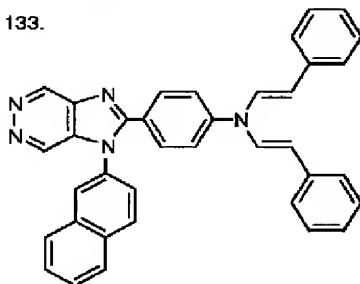
131.



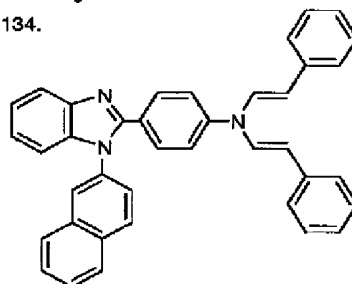
132.



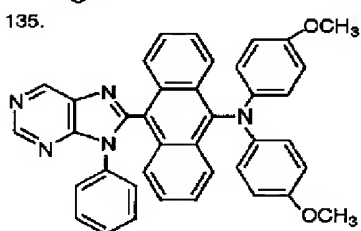
133.



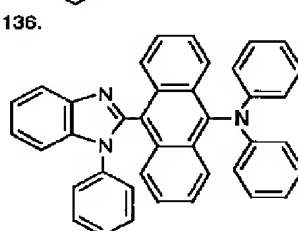
134.



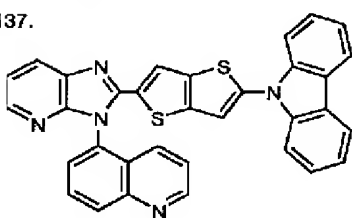
135.



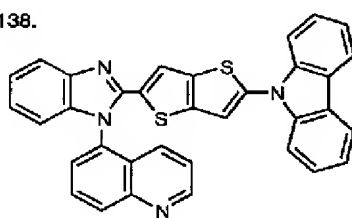
136.



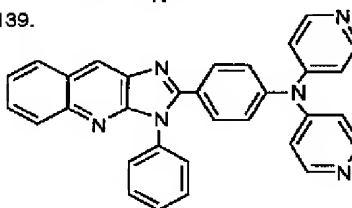
137.



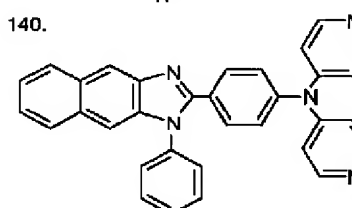
138.



139.



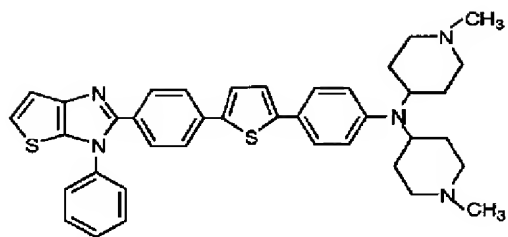
140.



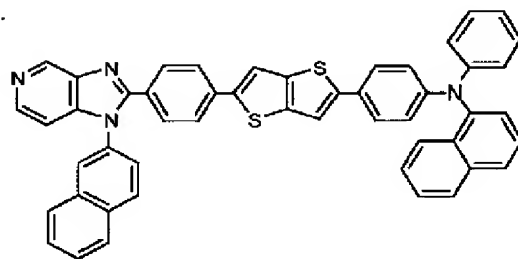
【0104】

【化48】

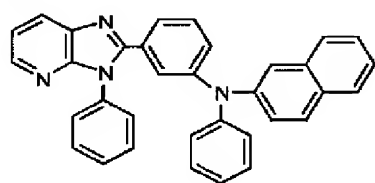
141.



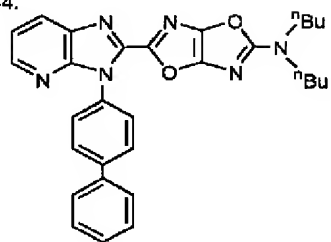
142.



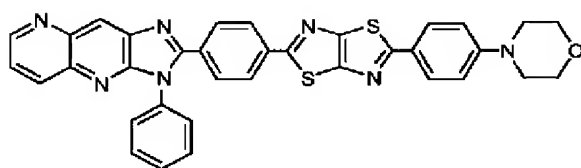
143.



144.

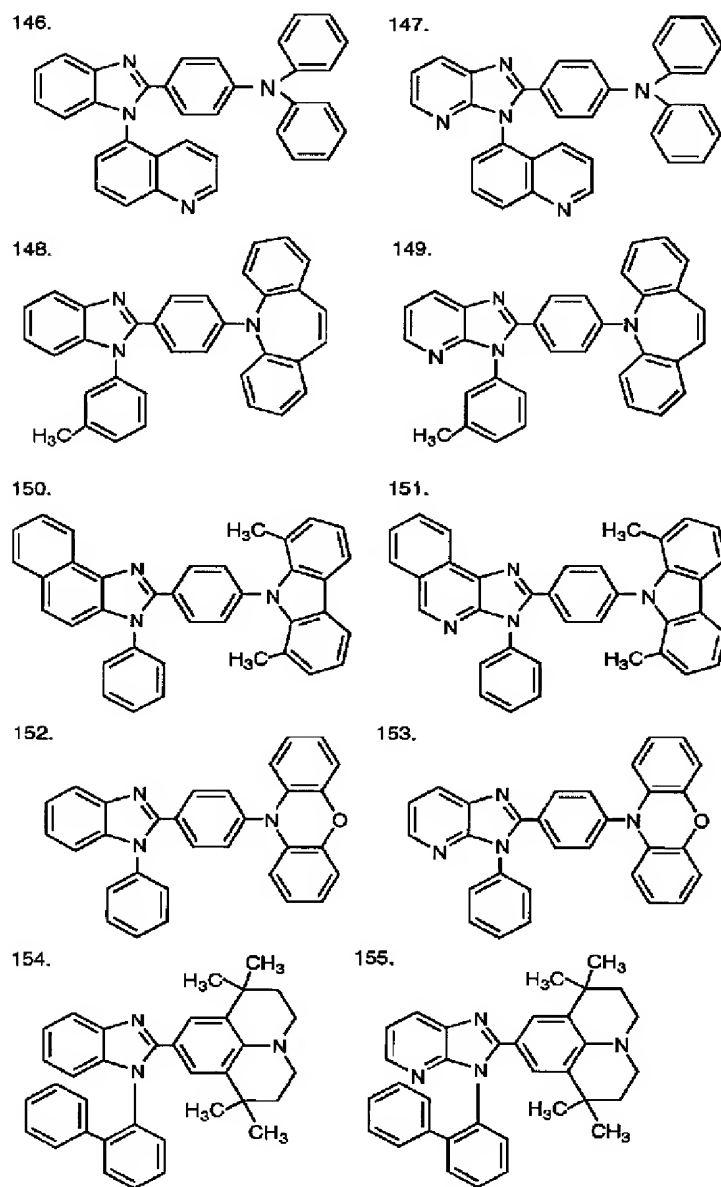


145.



【0105】

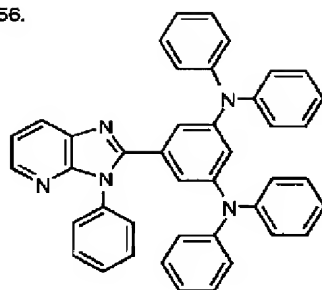
【化49】



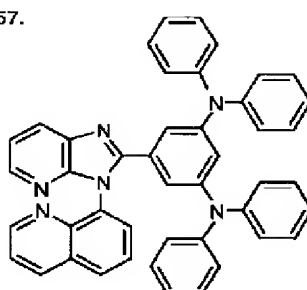
【 0 1 0 6 】

【 化 5 0 】

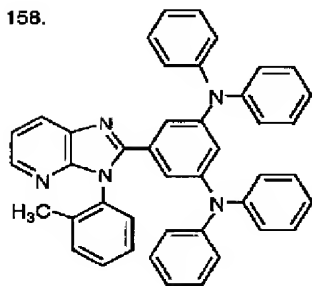
156.



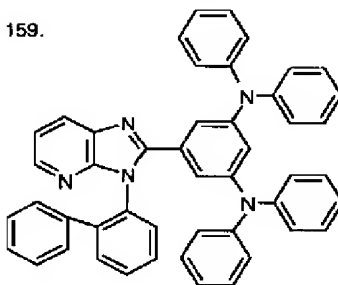
157.



158.



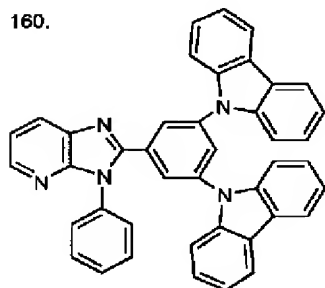
159.



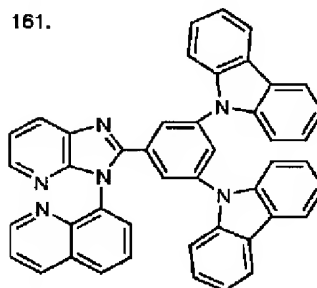
【0107】

【化51】

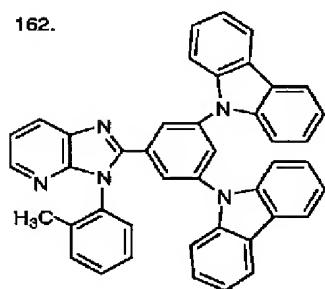
160.



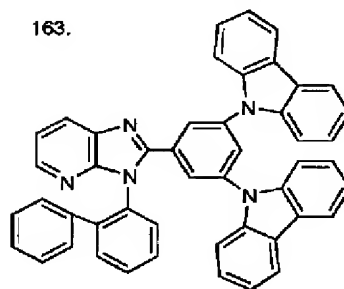
161.



162.



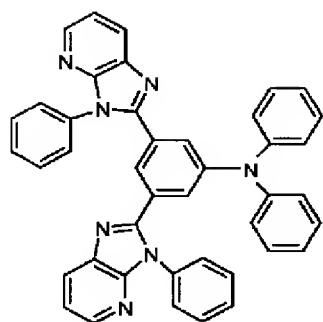
163.



【0108】

【化52】

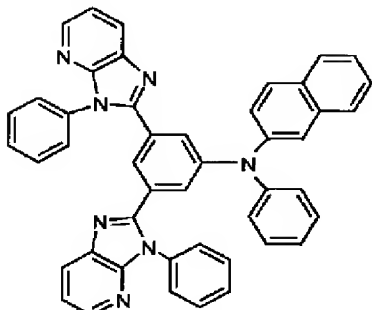
164.



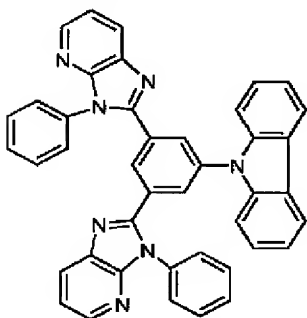
【0109】

【化53】

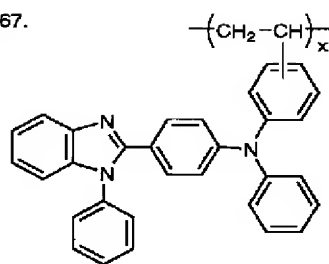
165.



166.

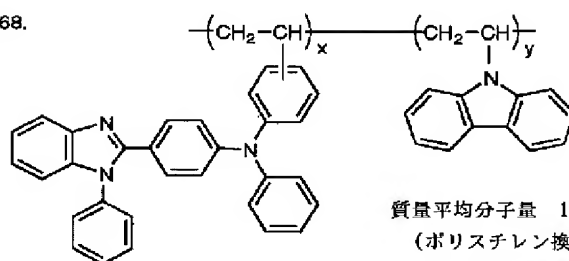


167.



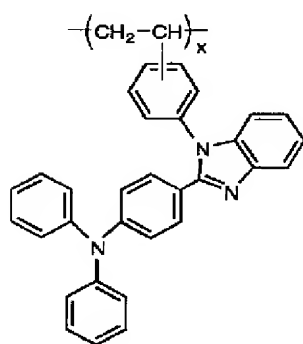
質量平均分子量 18,000  
(ポリスチレン換算)

168.



質量平均分子量 100,000  
(ポリスチレン換算)  
x:y=1:50 (質量比)

169.

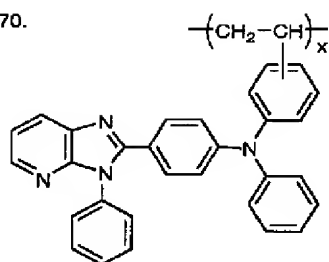


質量平均分子量 18,000  
(ポリスチレン換算)

【0110】

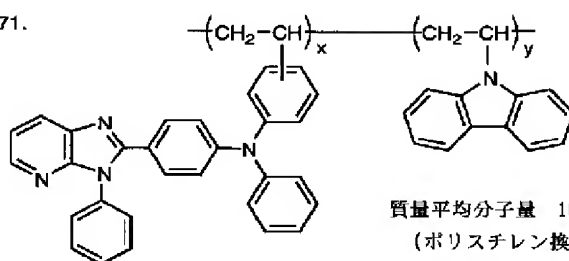
【化54】

170.



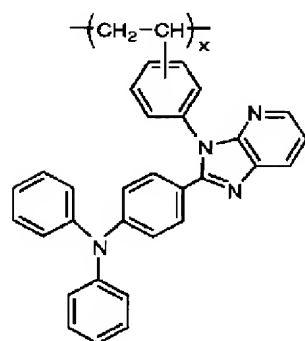
質量平均分子量 18,000  
(ポリスチレン換算)

171.



質量平均分子量 100,000  
(ポリスチレン換算)  
x:y=1:50 (質量比)

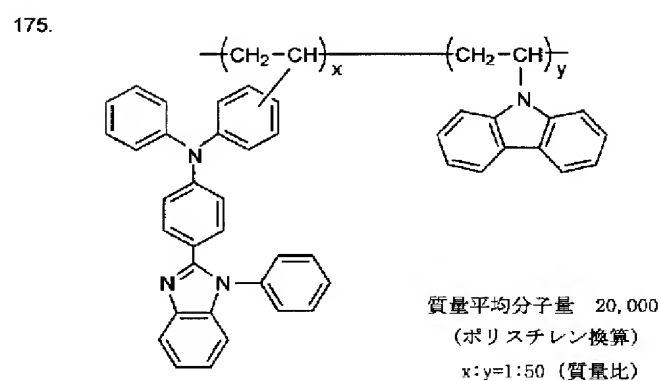
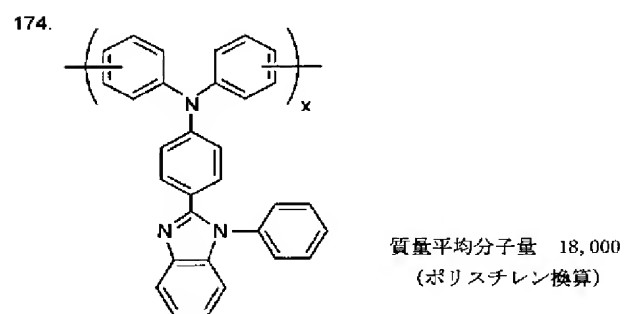
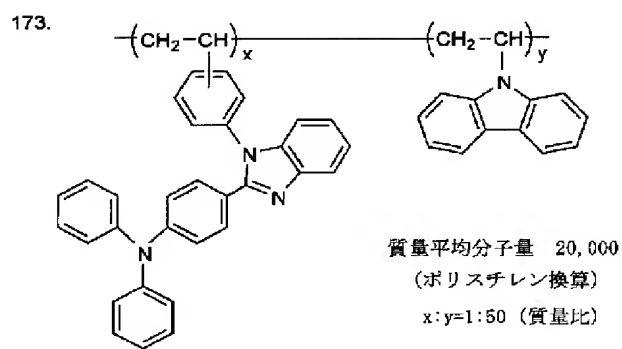
172.



質量平均分子量 18,000  
(ポリスチレン換算)

【 0 1 1 1 】

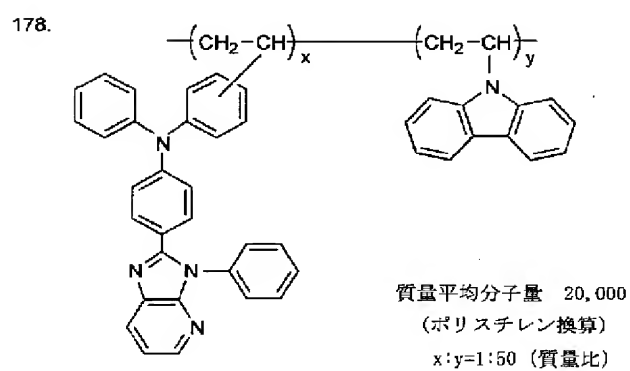
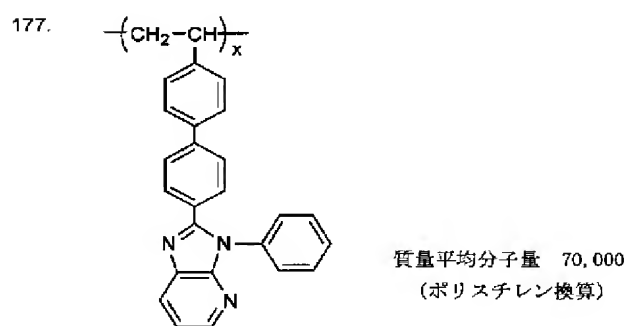
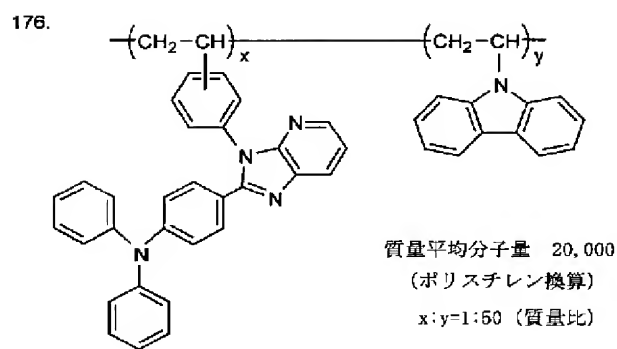
【 化 5 5 】



【0112】

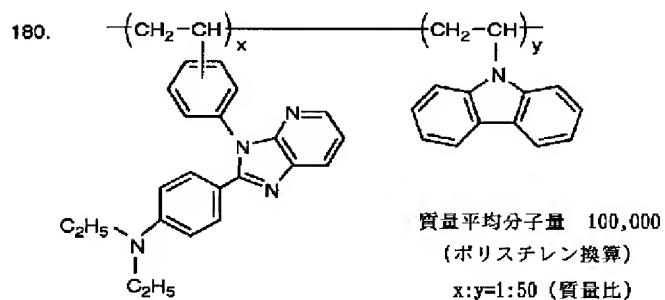
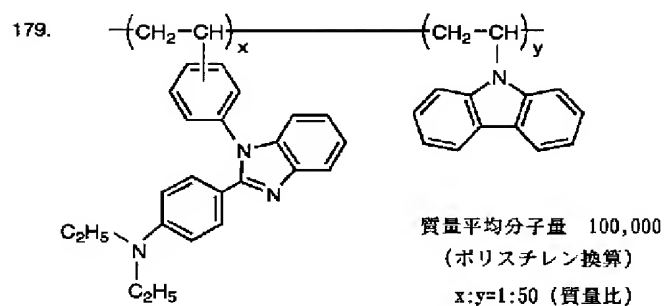
【化56】





【0113】

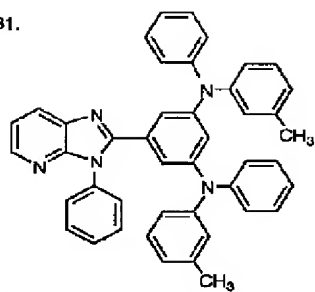
【化57】



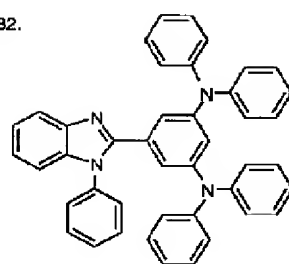
【 0 1 1 4 】

【 化 5 8 】

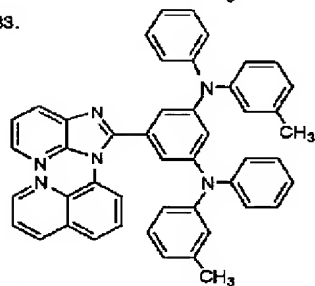
181.



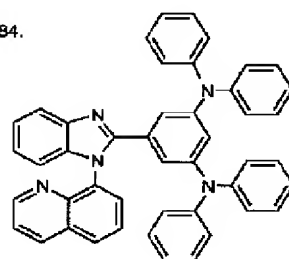
182.



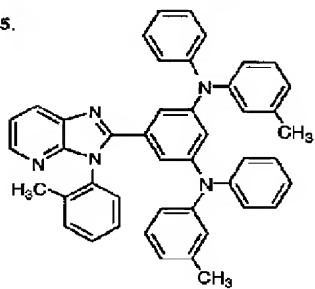
183.



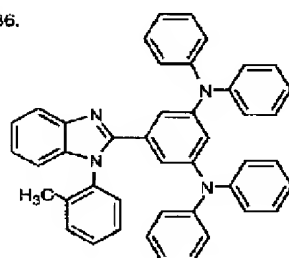
184.



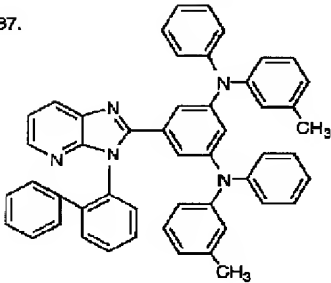
185.



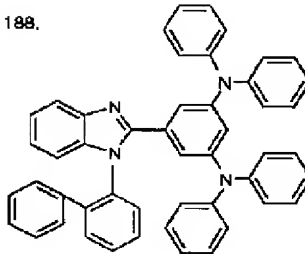
186.



187.

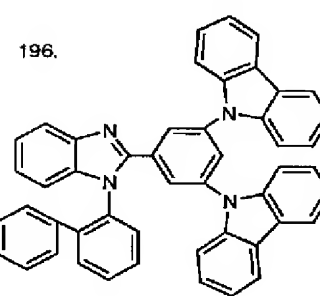
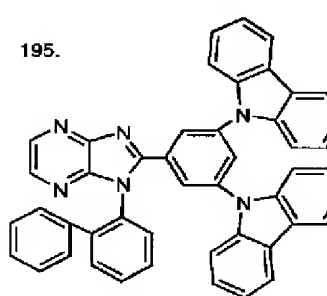
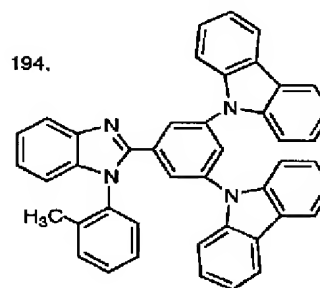
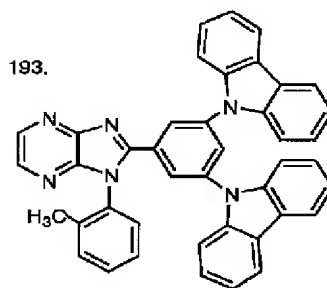
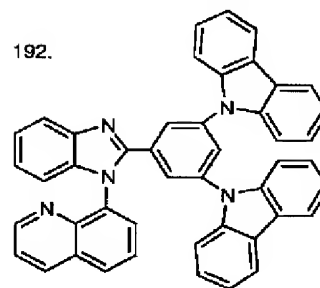
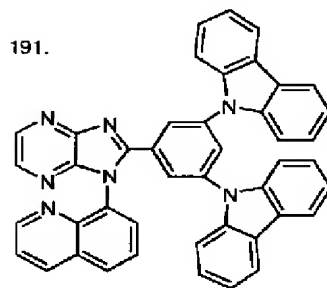
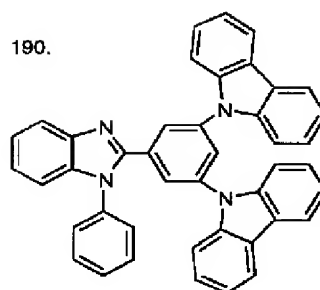
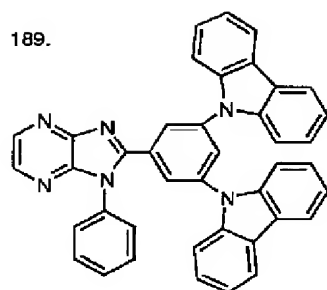


188.



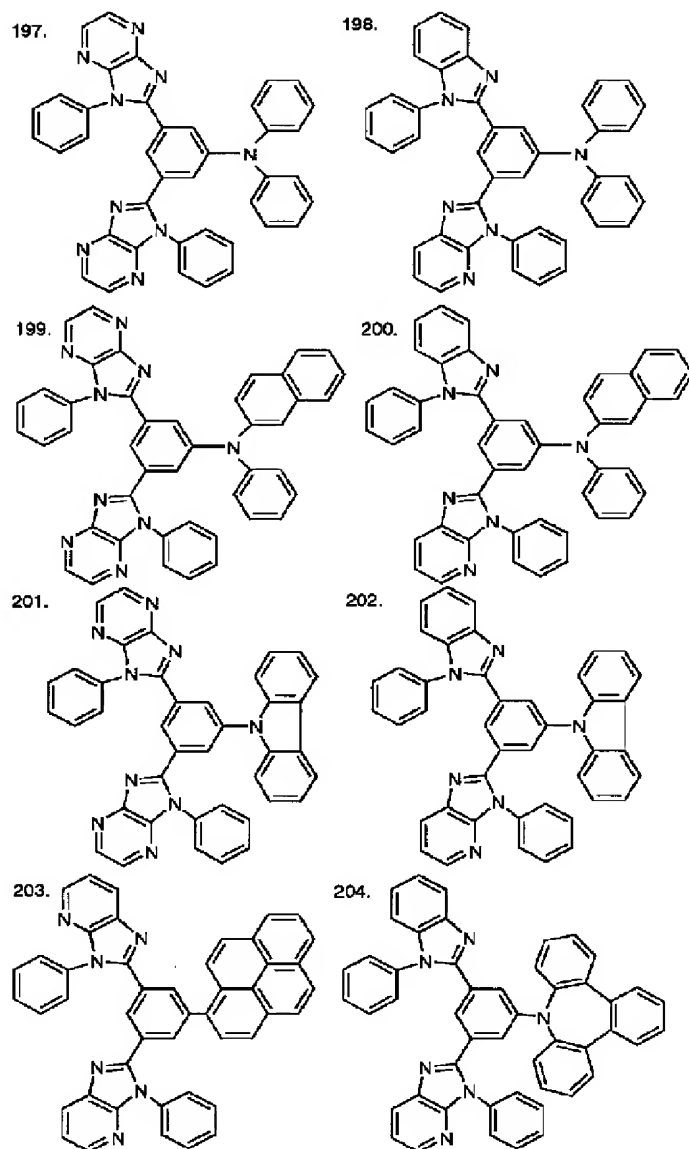
【0115】

【化59】



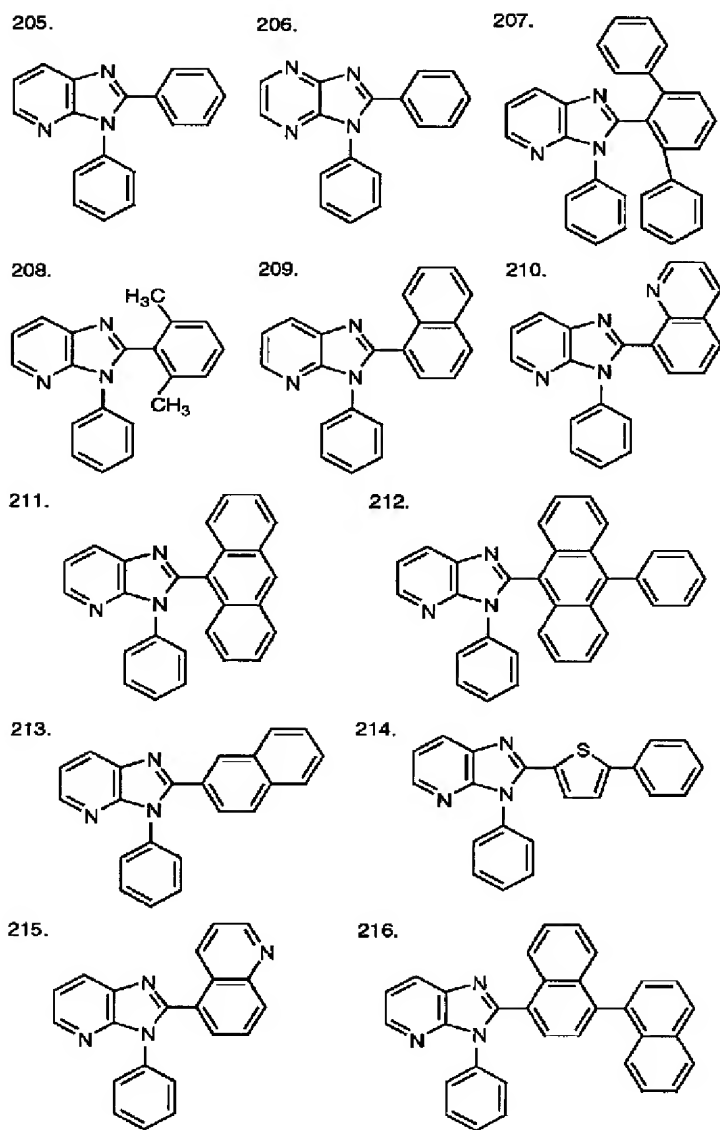
【0116】

【化60】



【0117】

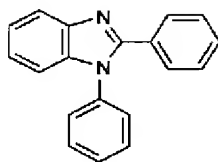
【化61】



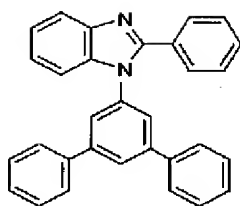
【 0118 】

【 化 6 2 】

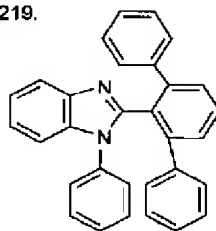
217.



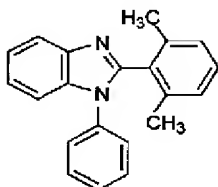
218.



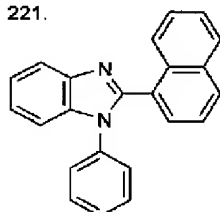
219.



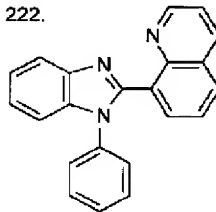
220.



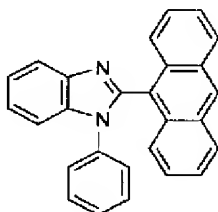
221.



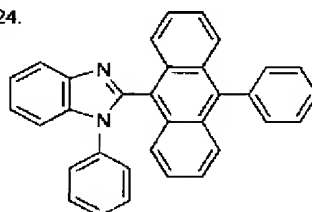
222.



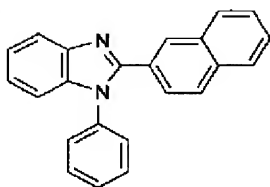
223.



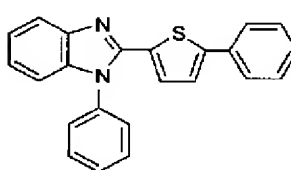
224.



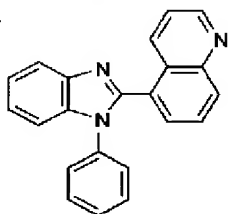
225.



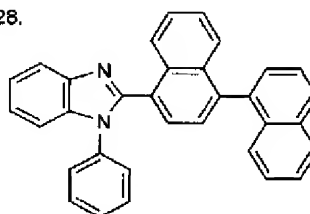
226.



227.



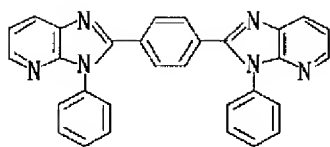
228.



【0119】

【化63】

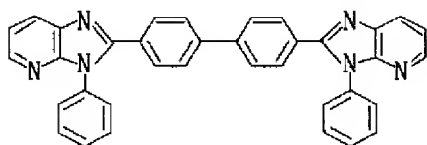
229.



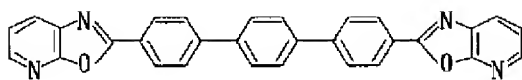
【0120】

【化64】

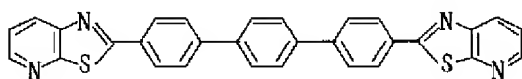
230.



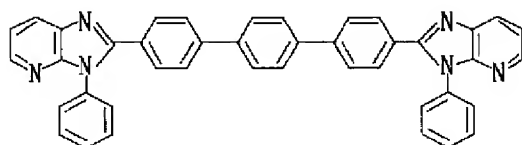
231.



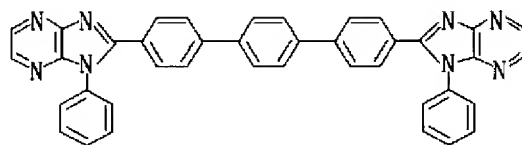
232.



233.

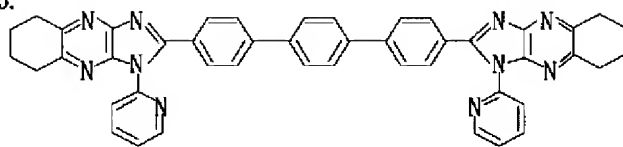


234.

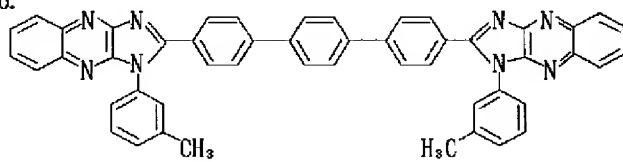




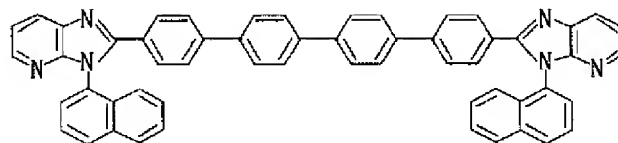
235.



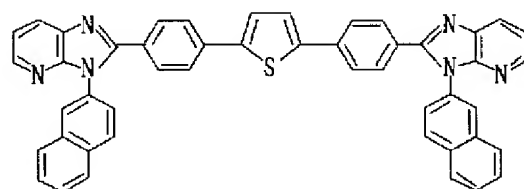
236.



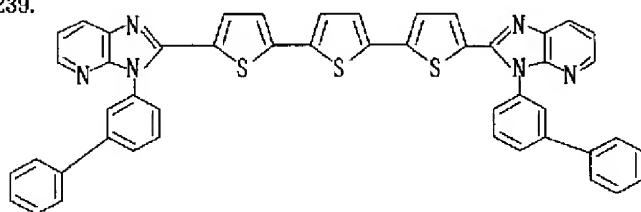
237.



238.



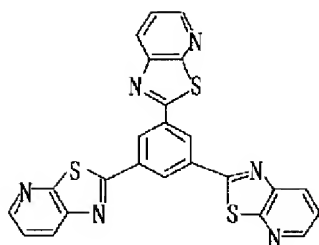
239.



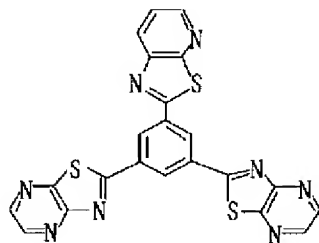
【 0 1 2 1 】

【 化 6 5 】

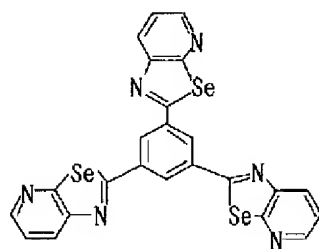
240.



241.

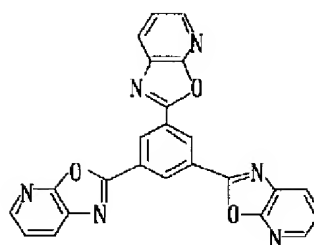


242.

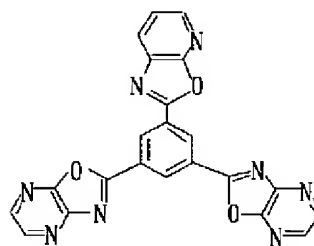


【0122】  
【化66】

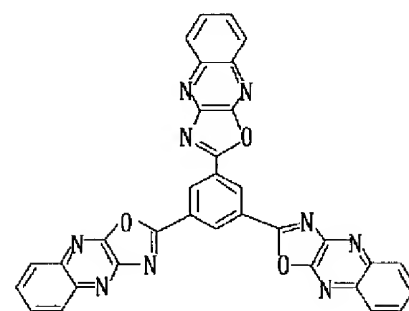
243.



244.

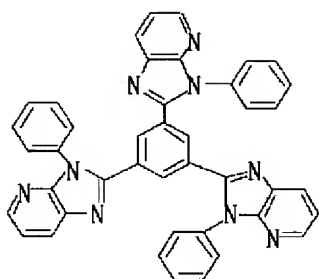


245.

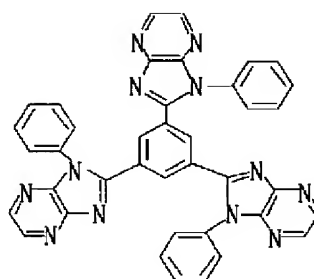


【0123】  
【化67】

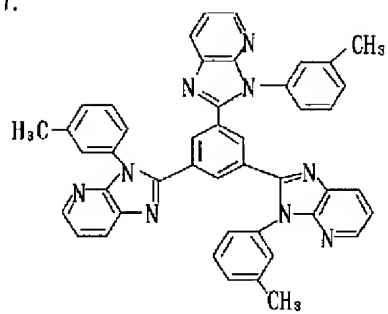
246.



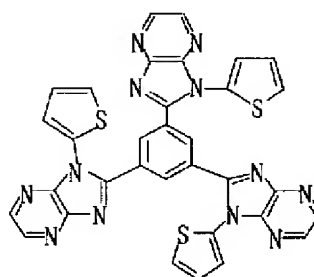
249.



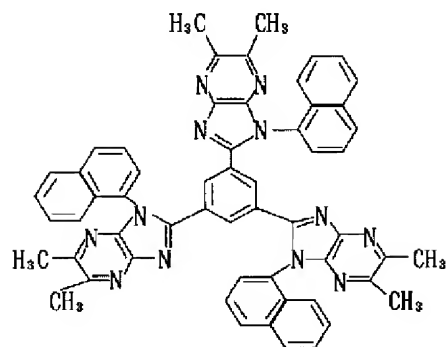
247.



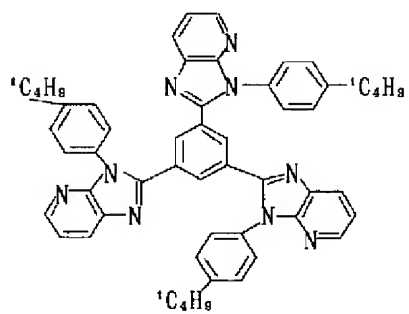
250.



251.



248.



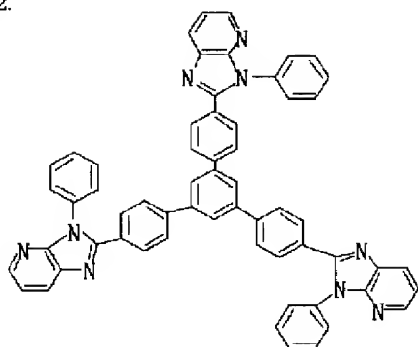
【 0 1 2 4 】

【 化 6 8 】

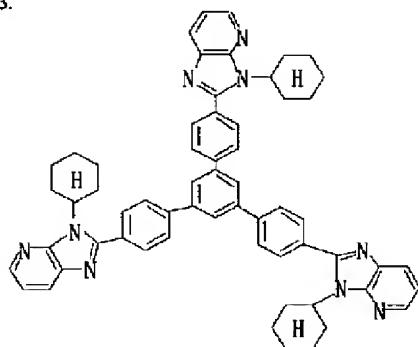
【 0 1 2 5 】

【 化 6 9 】

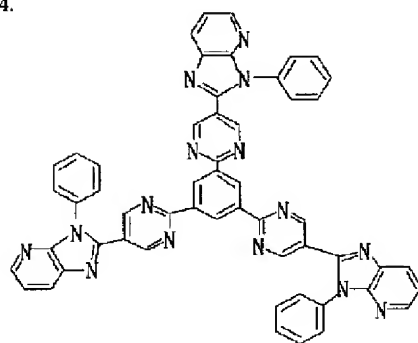
252.



253.

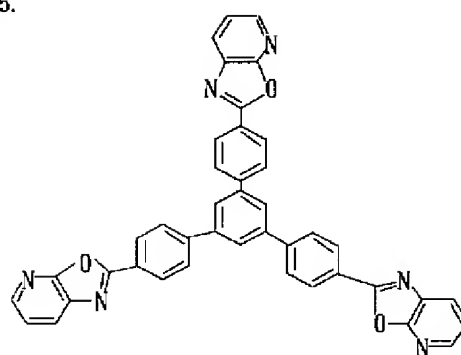


254.

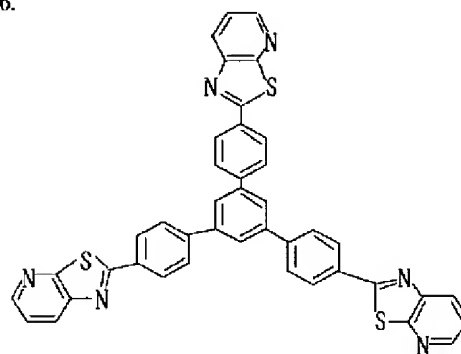


【0126】  
【化70】

255.

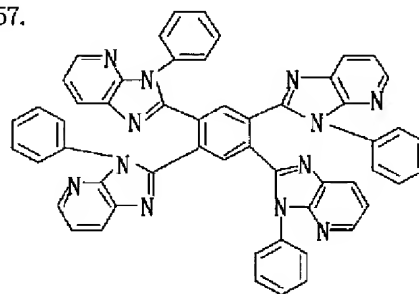


256.

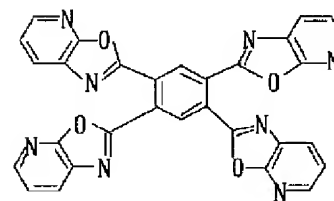


【0127】  
【化71】

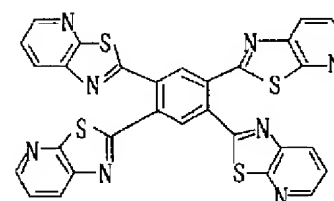
257.



258.



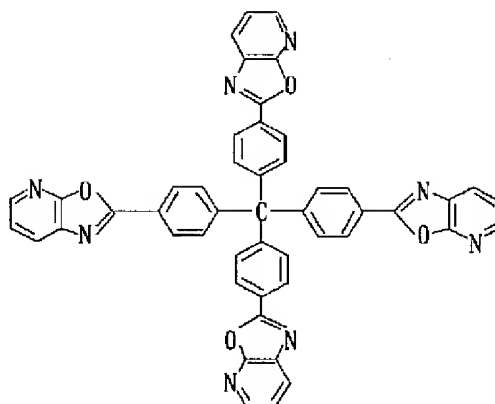
259.



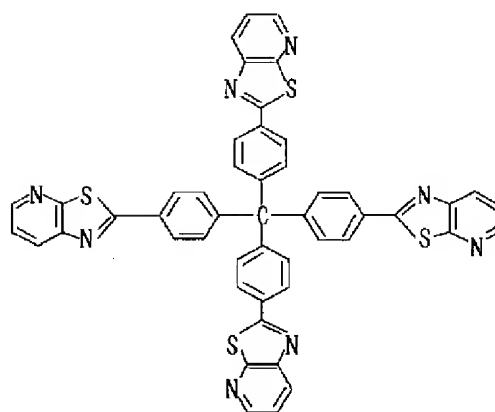
【0128】

Chemical structure of compound 10: A central benzene ring substituted with four phenyl groups. Two of these phenyl groups are further substituted with a 1-phenyl-1H-pyrazol-5-yl group at the para position.

263.



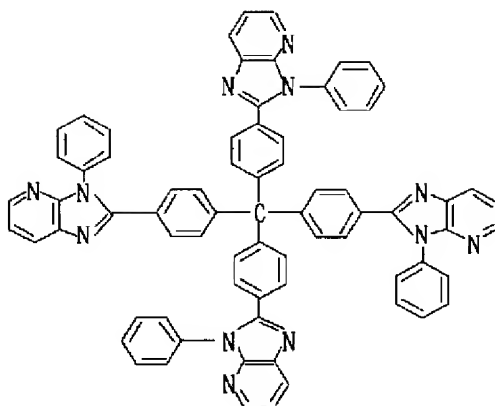
264.



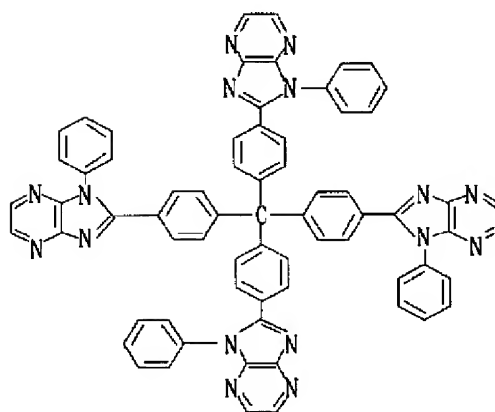
【 0 1 3 0 】

【 化 7 4 】

265.



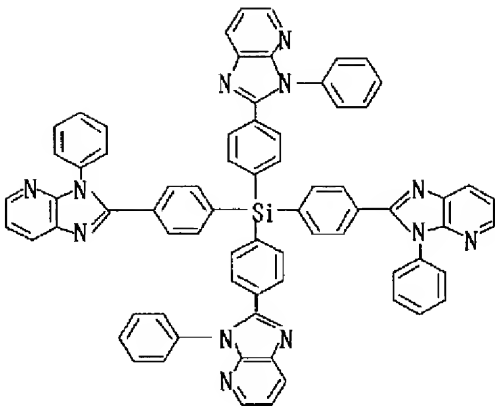
266.



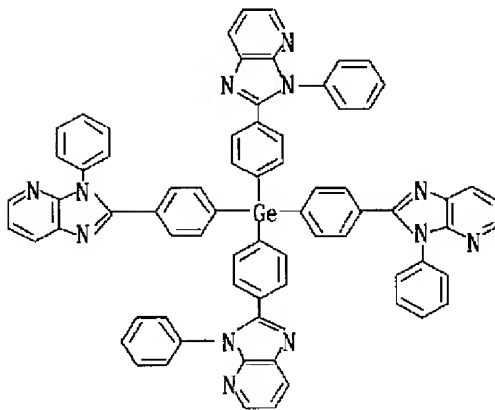
【 0 1 3 1 】

【 化 7 5 】

267.



268.

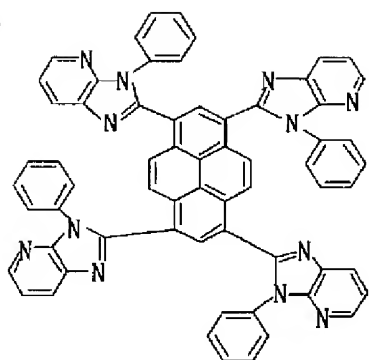


【 0 1 3 2 】

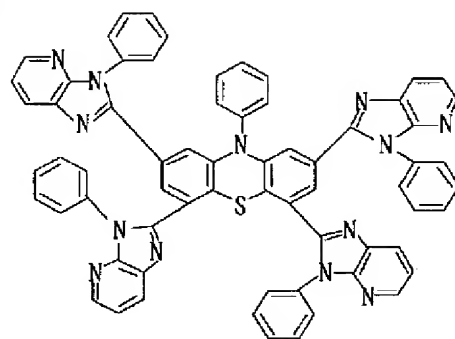
【化7 6】



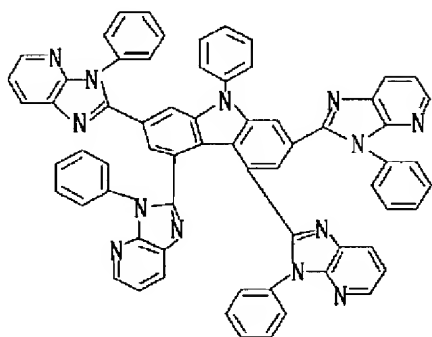
269.



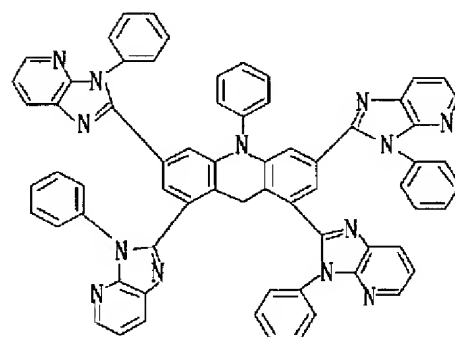
272.



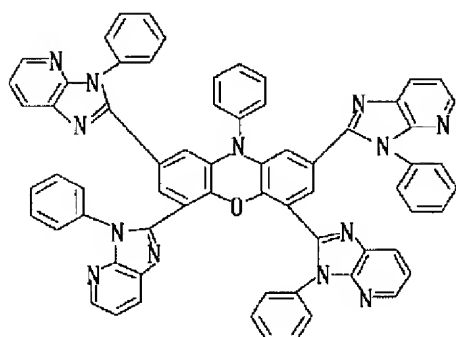
270.



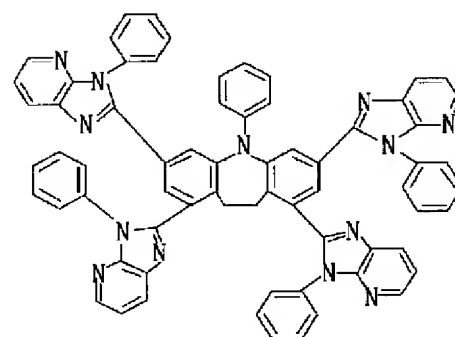
273.



271.



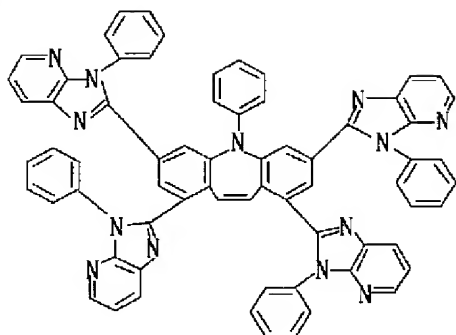
274.



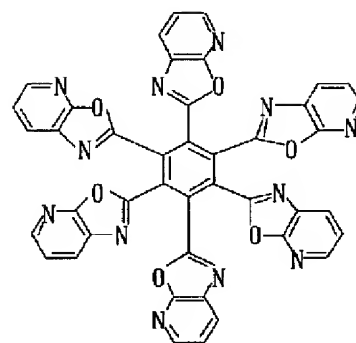
【0133】  
【化77】

【0134】  
【化78】

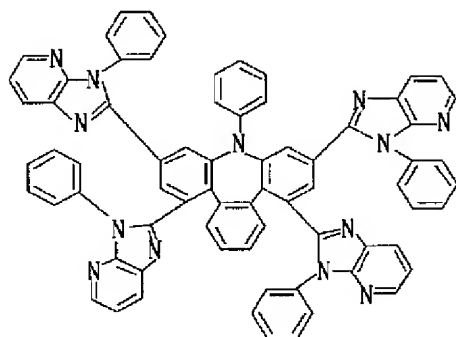
275.



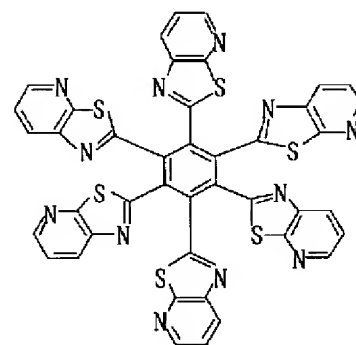
278.



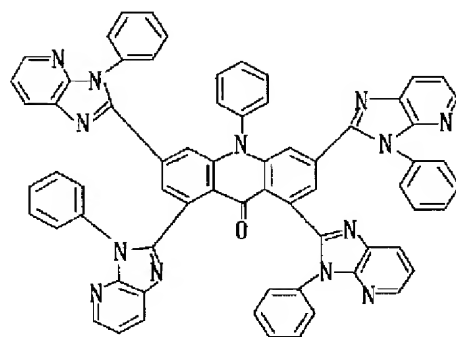
276.



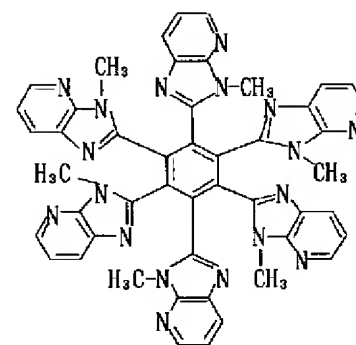
279.



277.



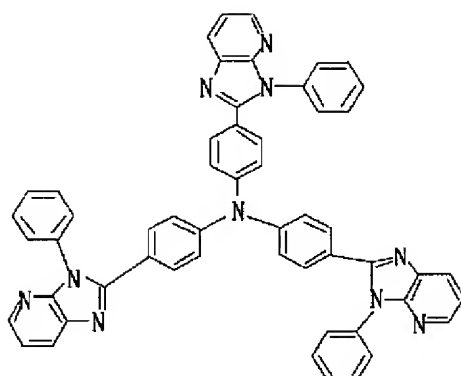
280.



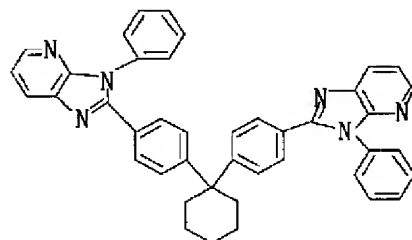
【0135】  
【化79】

【0136】  
【化80】

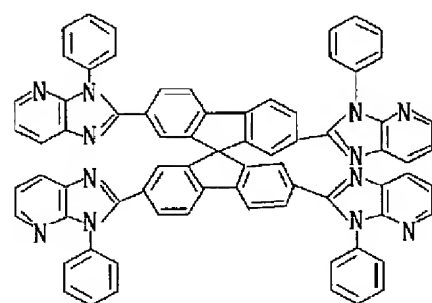
281.



282.



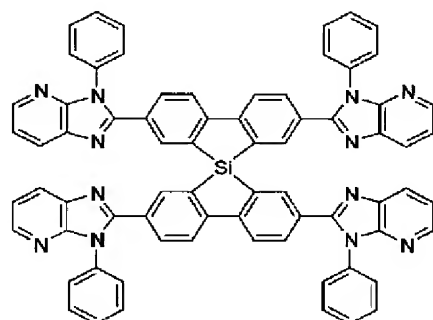
283.



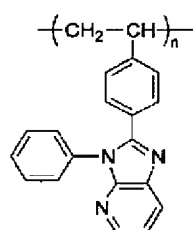
【 0137 】

【 化81 】

284.



285.

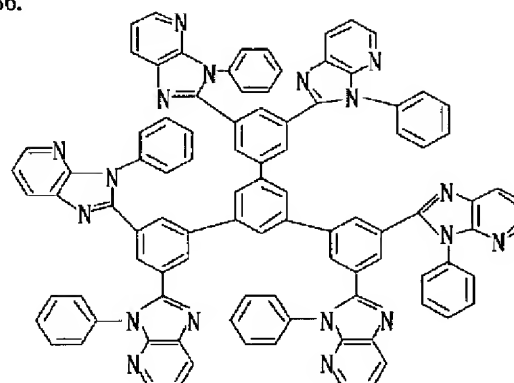


質量平均分子量 50,000  
(ポリスチレン換算)

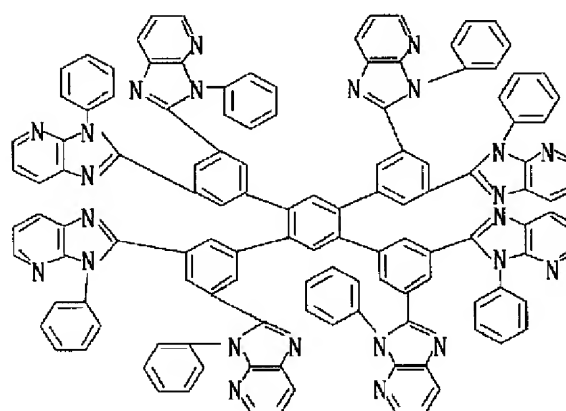
【 0138 】

【 化82 】

286.



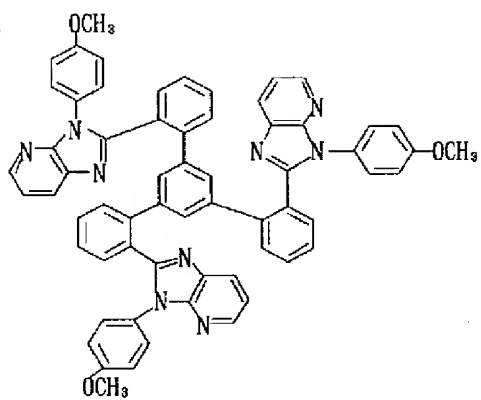
287.



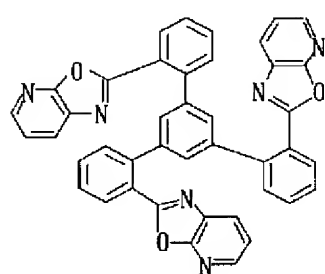
【 0139 】

【 化83 】

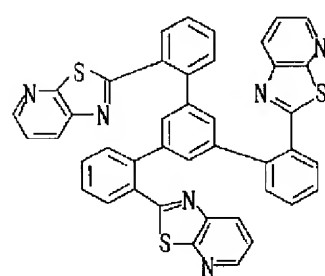
288.



289.



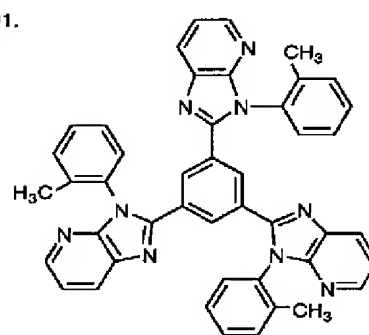
290.



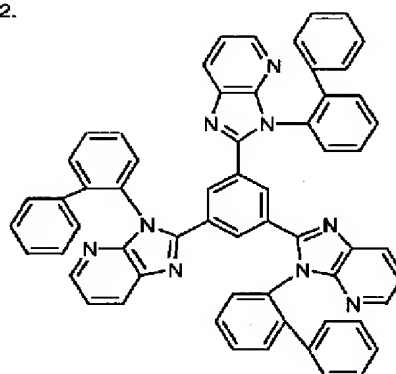
【 0 1 4 0 】

【 化 8 4 】

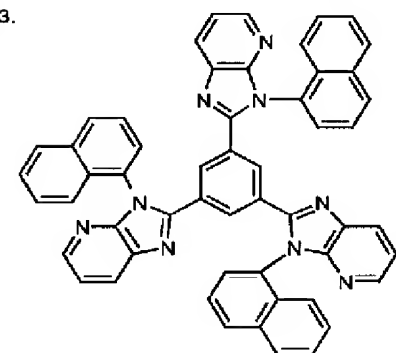
291.



292.



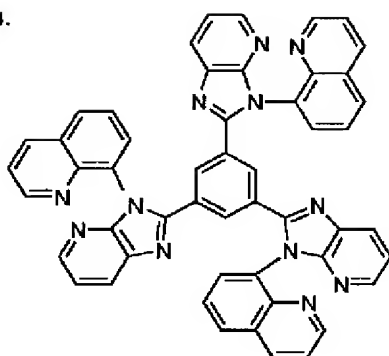
293.



【 0 1 4 1 】

【 化 8 5 】

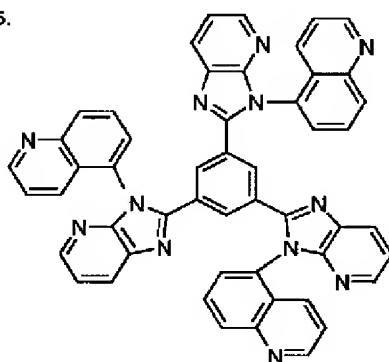
294.



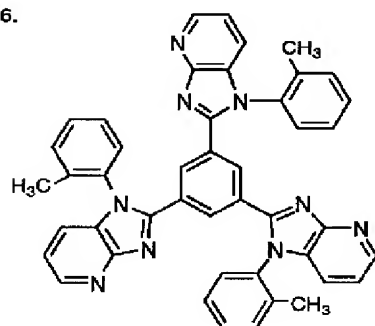
【 0 1 4 2 】

【 化 8 6 】

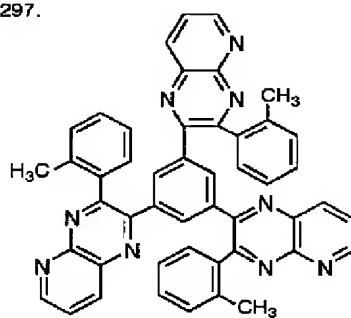
295.



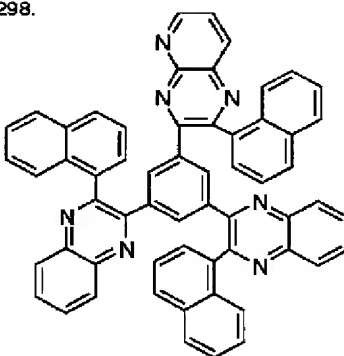
296.



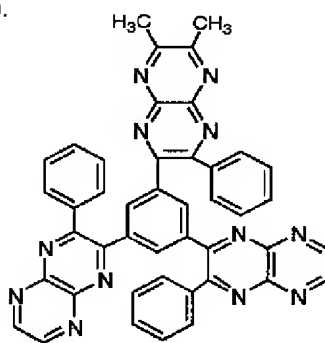
297.



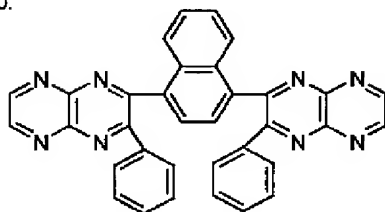
298.



299.



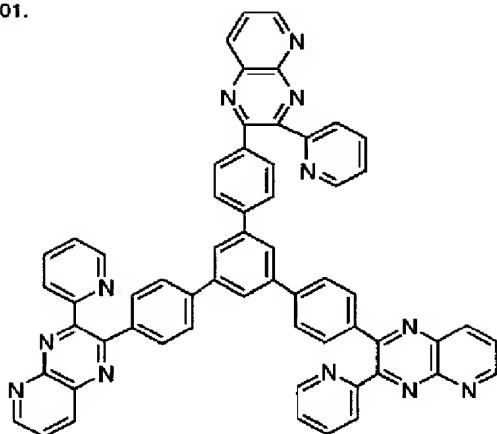
300.



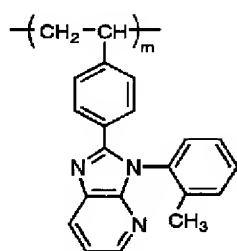
【0143】

【化87】

301.

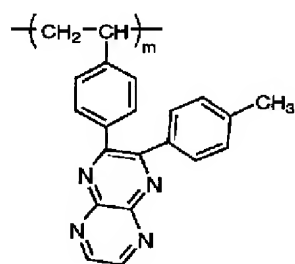


302.



質量平均分子量 21,000 (ポリスチレン換算)

303.

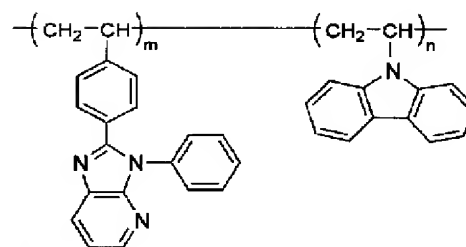


質量平均分子量 14,000 (ポリスチレン換算)

【 0 1 4 4 】

【 化 8 8 】

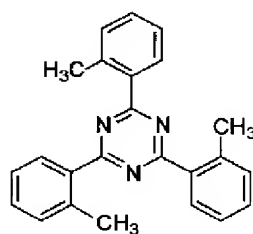
304.



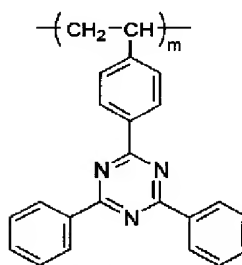
質量平均分子量 17,000 (ポリスチレン換算)

m:n=1:1 (モル比)

305.



306.

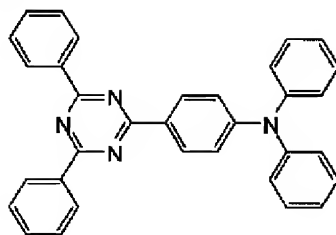


質量平均分子量 23,000 (ポリスチレン換算)

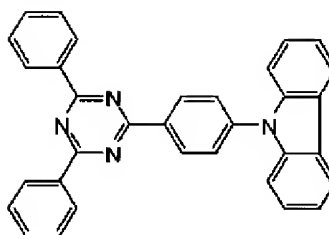
【 0 1 4 5 】

【 化 8 9 】

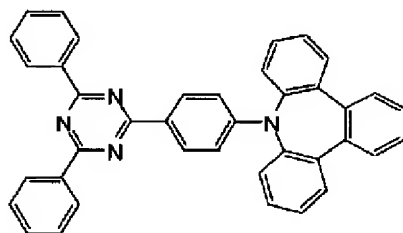
307.



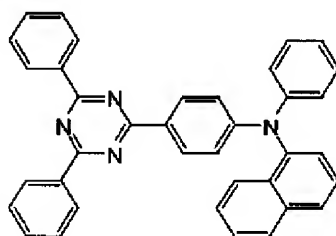
308.



309.



310.

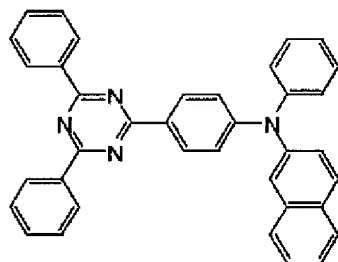


【 0 1 4 6 】

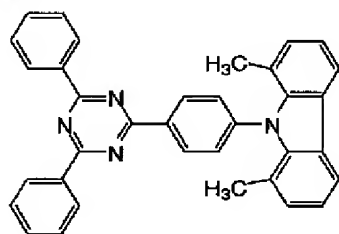
【 化 9 0 】



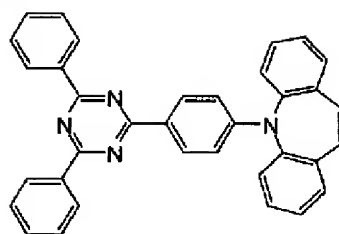
311.



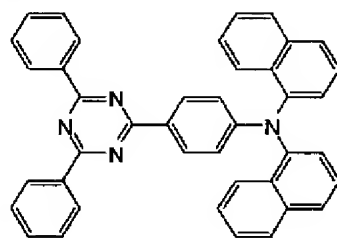
312.



313.



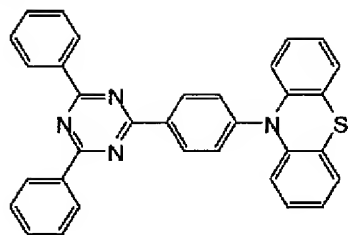
314.



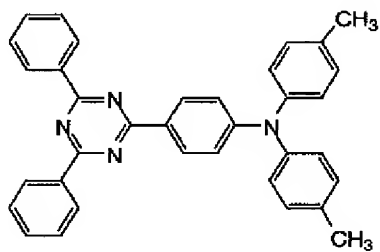
【 0 1 4 7 】

【 化 9 1 】

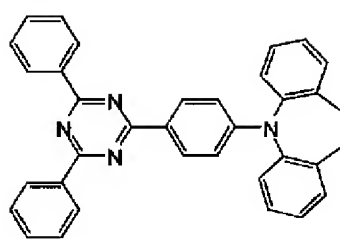
315.



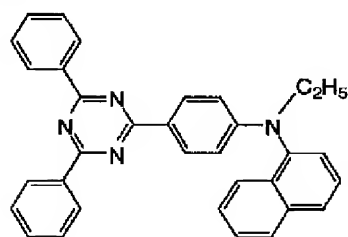
316.



317.



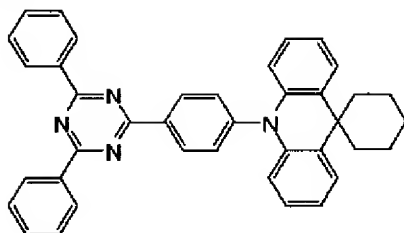
318.



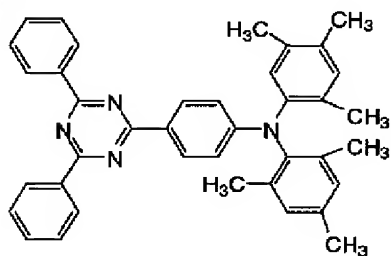
【 0 1 4 8 】

【 化 9 2 】

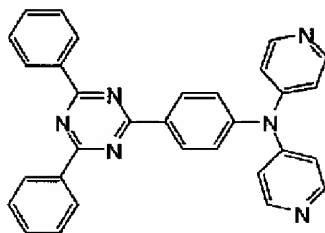
319.



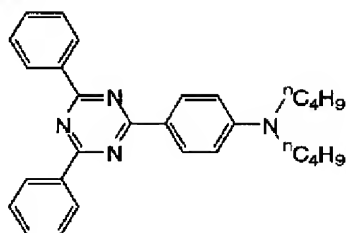
320.



321.



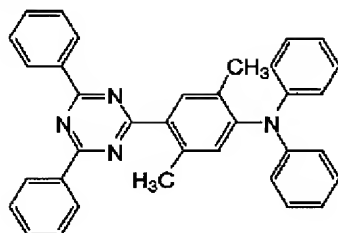
322.



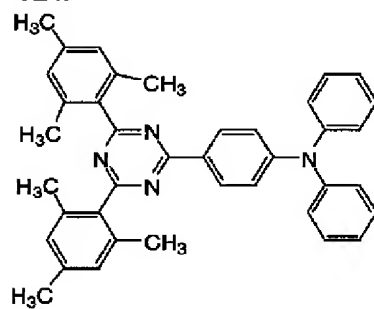
【0149】

【化93】

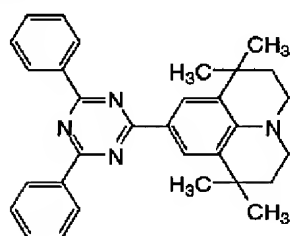
323.



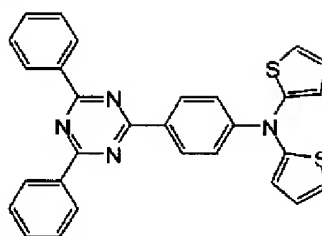
324.



325.



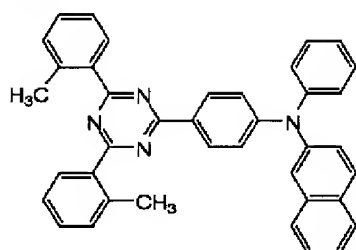
326.



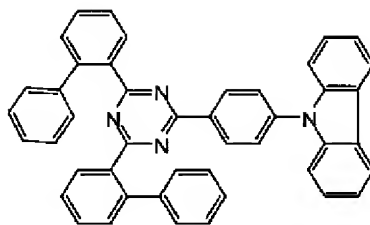
【 0 1 5 0 】

【 化 9 4 】

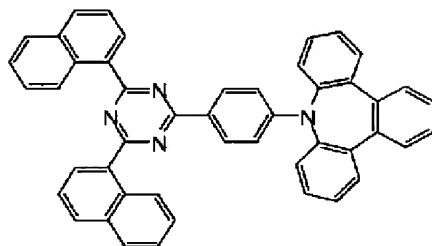
327.



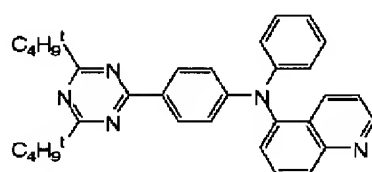
328.



329.



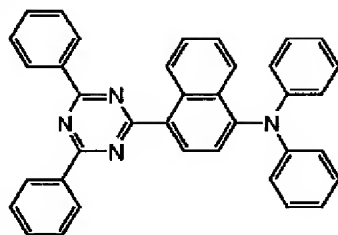
330.



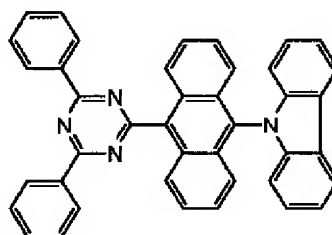
【 0151】

【 化95】

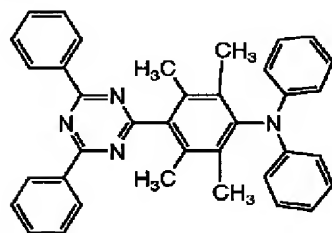
331.



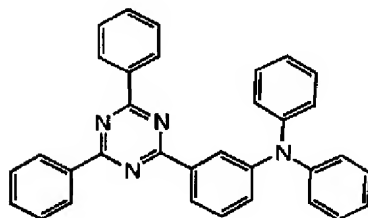
332.



333.



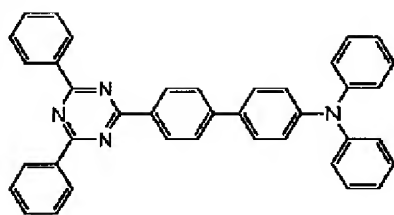
334.



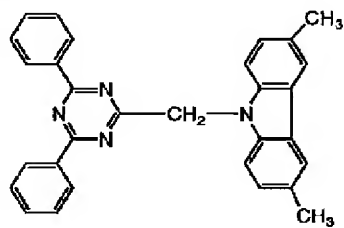
【 0 1 5 2 】

【 化 9 6 】

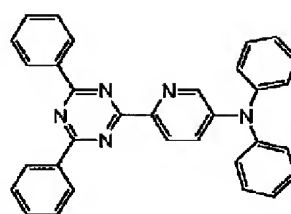
335.



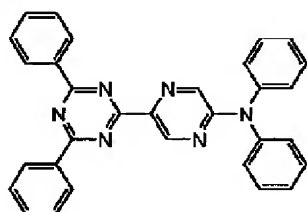
336.



337.



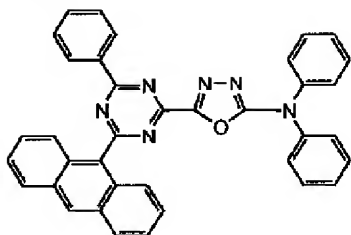
338.



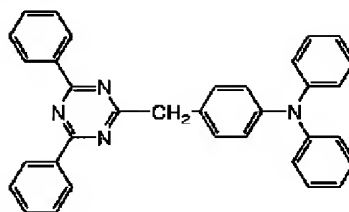
【0153】

【化97】

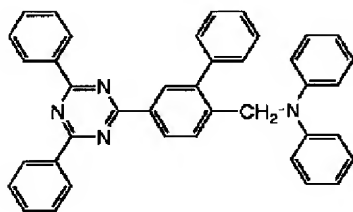
339.



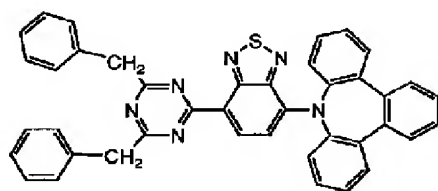
340.



341.



342.

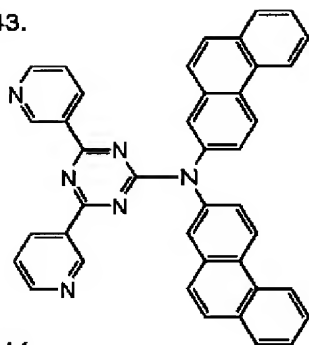


【0154】

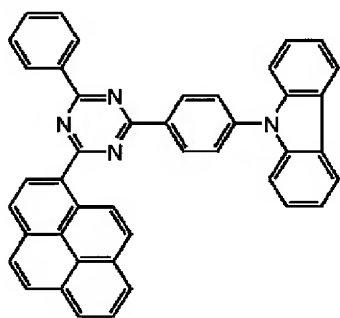
【化98】



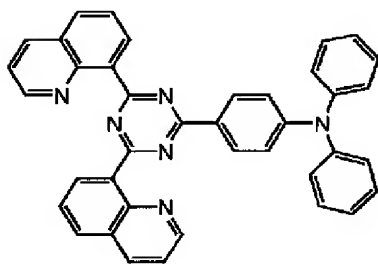
343.



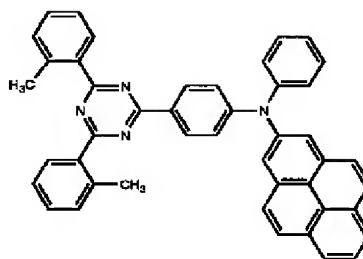
344.



345.



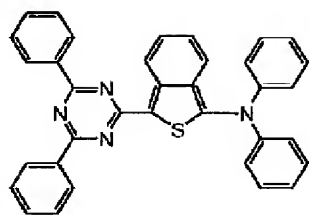
346.



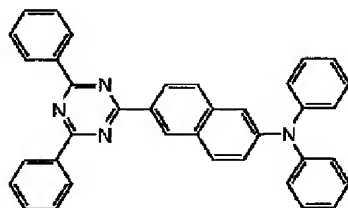
【 0 1 5 5 】

【 化 9 9 】

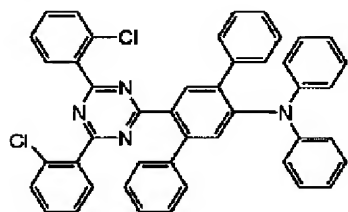
347.



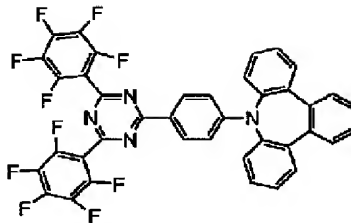
348.



349.



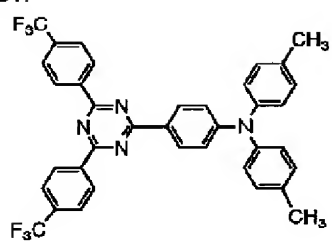
350.



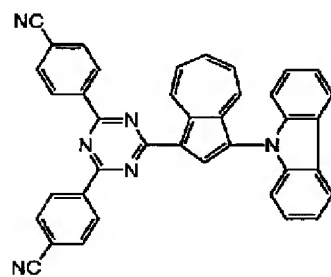
【0156】

【化100】

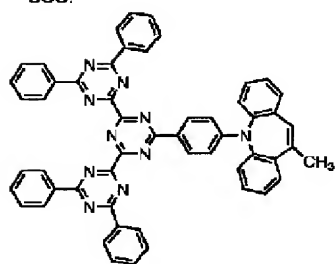
351.

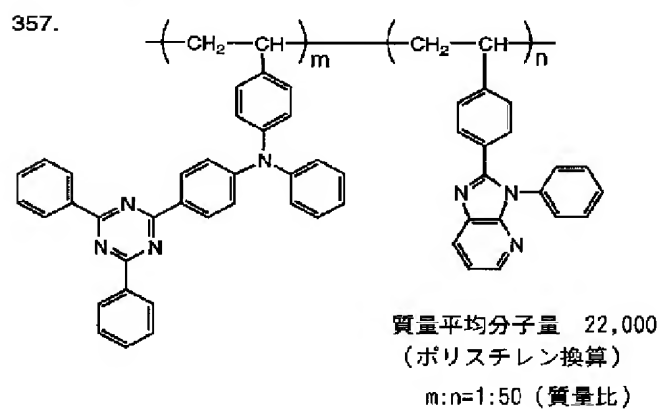
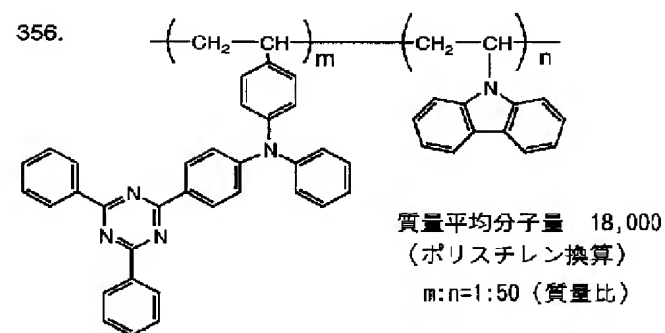
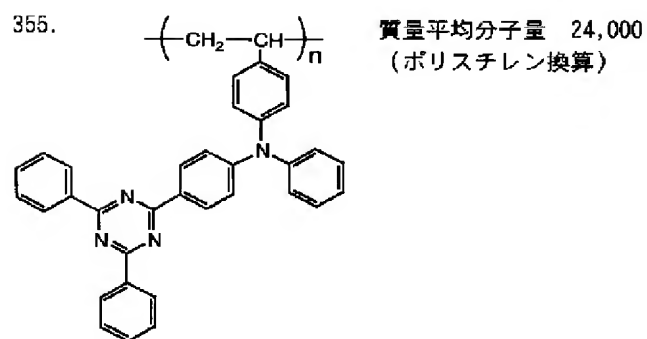


352.

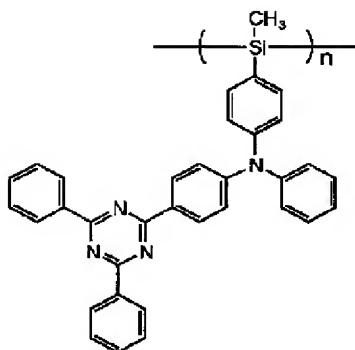


353.



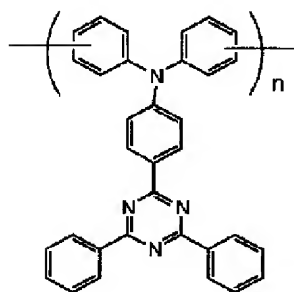


358.



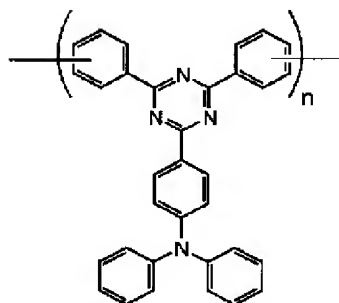
質量平均分子量 5,000  
(ポリスチレン換算)

359.



質量平均分子量 10,000  
(ポリスチレン換算)

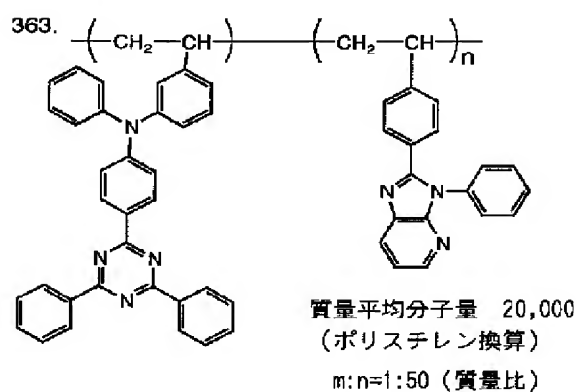
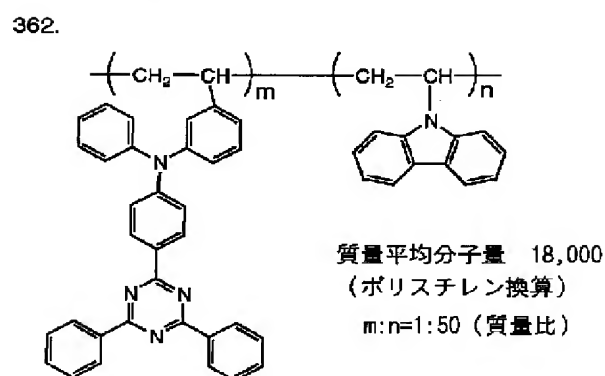
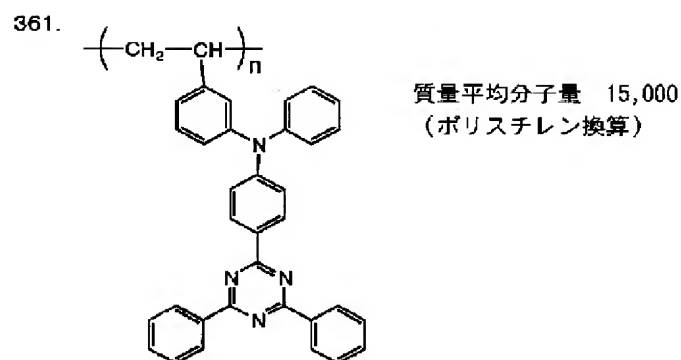
360.



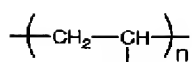
質量平均分子量 8,000  
(ポリスチレン換算)

【0159】

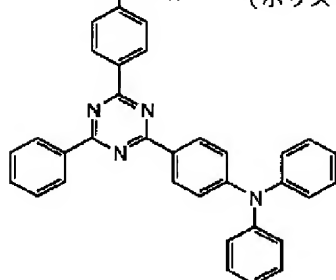
【化103】



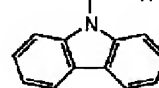
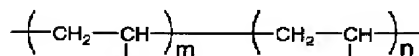
364.



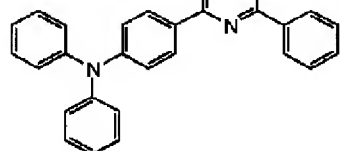
質量平均分子量 21,000  
(ポリスチレン換算)



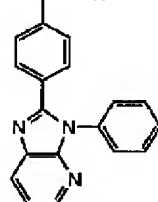
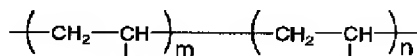
365.



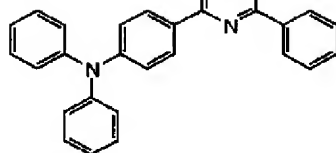
質量平均分子量 25,000  
(ポリスチレン換算)  
m:n=1:50 (質量比)



366.



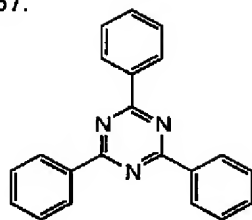
質量平均分子量 22,000  
(ポリスチレン換算)  
m:n=1:50 (質量比)



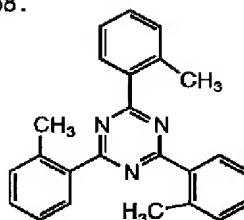
【 0161 】

【 化105 】

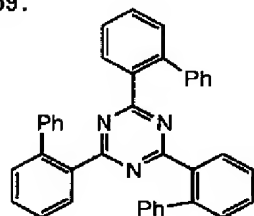
367.



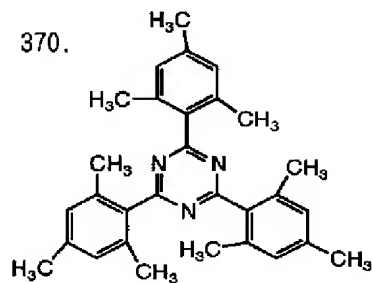
368.



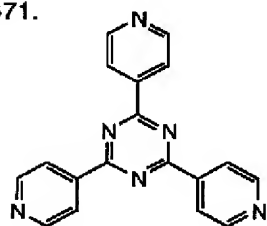
369.



370.



371.

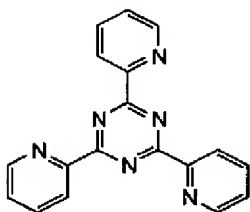


【0162】

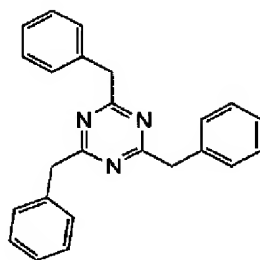
【化106】



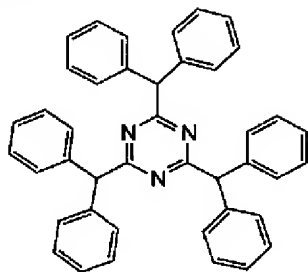
372.



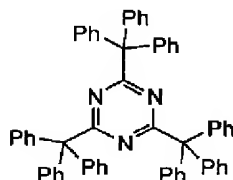
373.



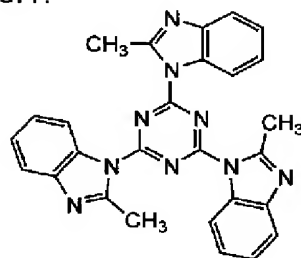
374.



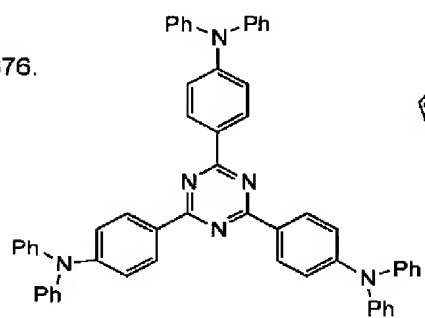
375



377.



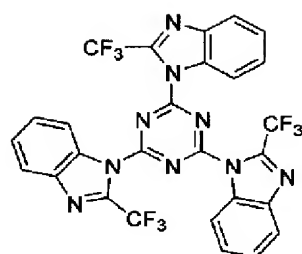
376.



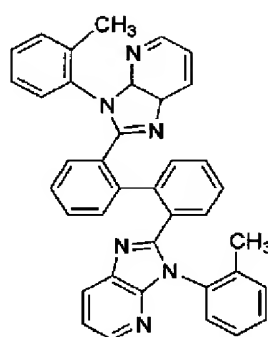
【0163】

【化107】

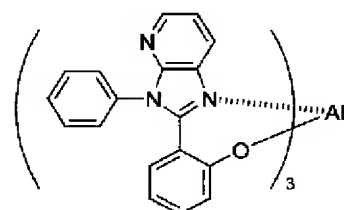
378.



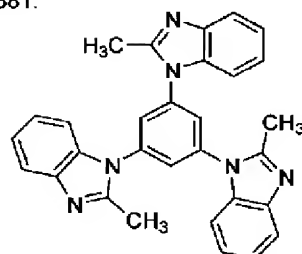
379.



380.



381.



【0164】本発明で用いる一般式(I)で表される化合物は、特公昭44-23025号、同48-8842号、特開昭53-6331号、特開平10-92578号、米国特許3,449,255号、同5,766,779号、J. Am. Chem. Soc., 94, 2414(1972)、Helv. Chim. Acta, 63, 413(1980)、Liebigs Ann. Chem., 1423(1982)などに記載の方法を参考にして合成できる。

【0165】安価かつ大面積の製造が可能な塗布プロセスによる製造を指向した場合、本発明の有機層は高分子化合物を含むことが好ましい。この場合高分子化合物とは、質量平均分子量が1000~5000000、好ましくは5000~2000000、更に好ましくは10

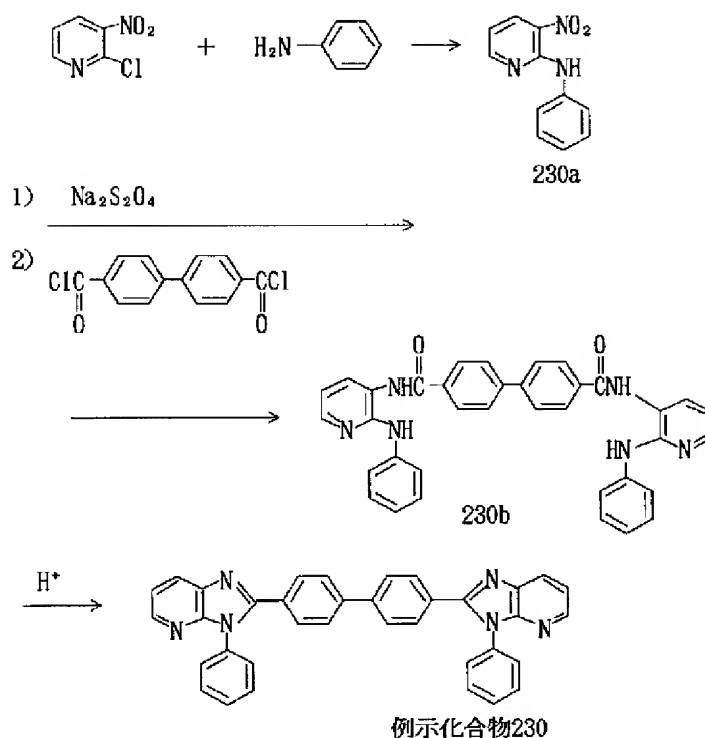
000~1000000の化合物であり、電子の注入・輸送機能、ホールの注入・輸送機能、電荷再結合機能、励起子エネルギーの発光材料への効率よい移動機能、発光機能のうち、少なくとも一つの機能を有するもの、またはそれ自身は上記の機能は有しないが、各機能性材料を分散し、成膜可能にするものであり、例えばポリビニルカルバゾール、ポリアリーレンビニレン、ポリカーボネート、ポリメチルメタクリレートなどが挙げられる。

【0166】以下に本発明の一般式(I)で表される化合物の合成法について具体例をもって説明する。

合成例1. 例示化合物230の合成

【0167】

【化108】



## 【0168】1-1. 化合物230aの合成

2-クロロ-3-ニトロピリジン50.8g (0.320モル)、炭酸カリウム90.8g (0.657モル)、ヨウ化銅(I)7.90g (0.0416モル)、トルエン300ミリリットルを室温にて窒素雰囲気下撹拌しているところへ、アニリン45.7g (0.490モル)を加えた。5時間加熱還流した後、反応液を濾過し、濾液を減圧濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンにて再結晶することにより化合物230aを45.7g (0.21モル)得た。収率66%。

## 【0169】1-2. 化合物230bの合成

化合物230a 17.0g (0.0790モル)をテトラヒドロフラン170ミリリットルに溶解し、室温にて窒素雰囲気下撹拌しているところへハイドロサルファイトナトリウム69.0g (0.396モル)/水220ミリリットルの溶液を滴下した。1時間撹拌した後、酢酸エチル170ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナ

トリウム13.6g (0.162モル)/水140ミリリットルの溶液を滴下した。更に4,4'-ビフェニルジカルボニルクロリド10.0g (0.0358モル)/酢酸エチル100ミリリットルの溶液を滴下し、室温下5時間撹拌した。析出した固体を濾取し、水、次いで酢酸エチルで洗浄することにより化合物230bを16.0g (0.0277モル)得た。収率77%。

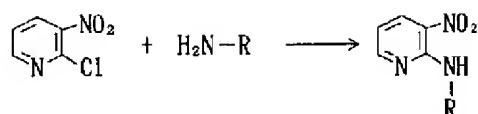
## 【0170】1-3. 例示化合物230の合成

化合物230b 10.0g (0.0173モル)、p-トルエンスルホン酸一水和物2.3g (0.0121モル)にキシレン300ミリリットルを加え、窒素雰囲気下6時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温まで冷却した後、析出した固体を濾取し、ジメチルホルムアミド/アセトニトリルにて再結晶することにより例示化合物230を5.20g (9.62ミリモル)得た。収率57%。融点: 298~300℃

## 【0171】合成例2. 例示化合物246の合成

## 【0172】

## 【化109】



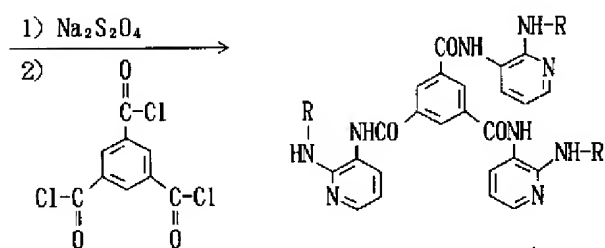
230a (R=phenyl)

247a (R=3-methylphenyl)

248a (R=4-tert-butylphenyl)

291a (R=2-methylphenyl)

294a (R=8-quinolyl)



246b (R=phenyl)

247b (R=3-methylphenyl)

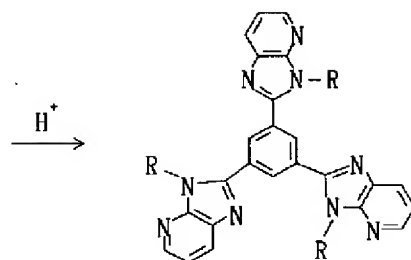
248b (R=4-tert-butylphenyl)

291b (R=2-methylphenyl)

294b (R=8-quinolyl)

【0173】

【化110】



例示化合物246(R=phenyl)

例示化合物247(R=3-methylphenyl)

例示化合物248(R=4-tert-butylphenyl)

例示化合物291(R=2-methylphenyl)

例示化合物294(R=8-quinolyl)

## 【0174】2-1. 化合物246bの合成

化合物230a 15.0g (0.0697mol)をテトラヒドロフラン150ミリリットルに溶解し、室温にて窒素雰囲気下撹拌しているところへハイドロサルファイトナトリウム60.9g (0.345mol)／水200ミリリットルの溶液を滴下した。2時間撹拌した後、酢酸エチル150ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム12.0g (0.143mol)／水120ミリリットルの溶液を滴下した。更にトリメシククロリド5.2g (0.0196mol)／酢酸エチル50ミリリ

ットルの溶液を滴下し、室温下3時間撹拌した。反応液に飽和食塩水を加え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽和食塩水で洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムにより乾燥した。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開溶媒：クロロホルム／メタノール＝10／1（vol／vol））にて精製した後、ジメチルホルムアミド／アセトニトリルにて再結晶することにより化合物246bを4.1g (5.76ミリモル)得た。収率29%。

## 【0175】2-2. 例示化合物246の合成

化合物246b 3.70g (5.20ミリモル)、p-トルエンスルホン酸一水和物0.7g (3.68ミリモル)にキシレン100ミリリットルを加え、窒素雰囲気下3時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温まで冷却した後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=20/1(vol/vol))にて精製した後、クロロホルム/メタノールにて再結晶することにより例示化合物246を1.70g (2.58ミリモル)得た。収率50%。融点:279~281℃

【0176】合成例3. 例示化合物247の合成

3-1. 化合物247aの合成

2-クロロ-3-ニトロピリジン50.0g (0.315モル)、炭酸カリウム90.8g (0.657モル)、ヨウ化銅(I)7.90g (0.0416モル)、トルエン300ミリリットルを室温にて窒素雰囲気下撹拌しているところへ、m-トルイジン45.0g (0.420モル)を加えた。8時間加熱還流した後、反応液を濾過し、濾液を減圧濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンにて再結晶することにより化合物247aを51.0g (0.222モル)得た。収率71%。

【0177】3-2. 化合物247bの合成

化合物247a 32.5g (0.142モル)をテトラヒドロフラン320ミリリットルに溶解し、室温にて窒素雰囲気下撹拌しているところへハイドロサルファイトナトリウム124g (0.712モル)/水320ミリリットルの溶液を滴下し、次いでメタノール100ミリリットルを加えた。1時間撹拌した後、酢酸エチル380ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム24.4g (0.290モル)/水55ミリリットルの溶液を滴下した。更にトリメシン酸クロリド10.5g (0.0396モル)/酢酸エチル100ミリリットルの溶液を滴下し、室温下3時間撹拌した。反応液に飽和食塩水を加え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽和食塩水で洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムにより乾燥した。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=10/1(vol/vol))にて精製することにより化合物247bを10.2g (0.0135モル)得た。収率34%。

【0178】3-3. 例示化合物247の合成

化合物247b 3.30g (4.38ミリモル)、p-トルエンスルホン酸一水和物0.5g (2.63ミリモル)にキシレン50ミリリットルを加え、窒素雰囲気下3時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温まで冷却した後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=20/1(vol/vol))にて精製した後、クロ

ロホルム/メタノールにて再結晶することにより例示化合物247を1.97g (2.81ミリモル)得た。収率64%。

融点:258~259℃

【0179】合成例4. 例示化合物248の合成

4-1. 化合物248aの合成

2-クロロ-3-ニトロピリジン45.5g (0.286モル)、炭酸カリウム81.1g (0.587モル)、ヨウ化銅(I)7.10g (0.0373モル)、トルエン300ミリリットルを室温にて窒素雰囲気下撹拌しているところへ、4-tert-ブチルアニリン40.0g (0.268モル)を加えた。8時間加熱還流した後、反応液を濾過し、濾液を減圧濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンにて再結晶することにより化合物248aを52.0g (0.192モル)得た。収率72%。

【0180】4-2. 化合物248bの合成

化合物248a 34.8g (0.128モル)をテトラヒドロフラン350ミリリットルに溶解し、室温にて窒素雰囲気下撹拌しているところへハイドロサルファイトナトリウム112g (0.643モル)/水320ミリリットルの溶液を滴下し、次いでメタノール90ミリリットルを加えた。1時間撹拌した後、酢酸エチル350ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム22.0g (0.262モル)/水50ミリリットルの溶液を滴下した。更にトリメシン酸クロリド9.5g (0.0358モル)/酢酸エチル90ミリリットルの溶液を滴下し、室温下2時間撹拌した。反応液に飽和食塩水を加え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽和食塩水で洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムにより乾燥した。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=10/1(vol/vol))にて精製することにより化合物248bを12.0g (0.0136モル)得た。収率38%。

【0181】4-3. 例示化合物248の合成

化合物248b 3.00g (3.41ミリモル)、p-トルエンスルホン酸一水和物0.3g (1.58ミリモル)にキシレン50ミリリットルを加え、窒素雰囲気下3時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温まで冷却した後、析出した固体を濾取した後、クロロホルム/メタノールにて再結晶することにより例示化合物248を2.06g (2.49ミリモル)得た。収率73%。融点:300℃以上

【0182】合成例5. 例示化合物291の合成

5-1. 化合物291aの合成

2-クロロ-3-ニトロピリジン50.0g (0.315モル)、炭酸カリウム90.8g (0.657モル)、ヨウ化銅(I)7.90g (0.0416モル)

ル)、トルエン300ミリリットルを室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへ、 $\alpha$ -トルイジン45.0g (0.420モル)を加えた。8時間加熱還流した後、反応液を濾過し、濾液を減圧濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンにて再結晶することにより化合物291aを46.3g (0.202モル)得た。収率64%。

#### 【0183】5-2. 化合物291bの合成

化合物291a 32.5g (0.142モル)をテトラヒドロフラン320ミリリットルに溶解し、室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへヒドロサルファイトナトリウム124g (0.712モル)/水320ミリリットルの溶液を滴下し、次いでメタノール100ミリリットルを加えた。1時間攪拌した後、酢酸エチル380ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム24.4g (0.290モル)/水55ミリリットルの溶液を滴下した。更にトリメシン酸クロリド10.5g (0.0396モル)/酢酸エチル100ミリリットルの溶液を滴下し、室温下3時間攪拌した。反応液に飽和食塩水を加え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽和食塩水で洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムにより乾燥した。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=10/1(v/v))にて精製することにより化合物291bを8.5g (0.0112モル)得た。収率28%。

#### 【0184】5-3. 例示化合物291の合成

化合物291b 3.30g (4.38ミリモル)、 $p$ -トルエンスルホン酸一水和物0.5g (2.63ミリモル)にキシレン50ミリリットルを加え、窒素雰囲気下7時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温まで冷却した後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=20/1(v/v))にて精製した後、クロロホルム/アセトニトリルにて再結晶することにより例示化合物291を2.02g (2.88ミリモル)得た。収率66%。融点:250℃

#### 【0185】合成例6. 例示化合物294の合成

##### 6-1. 化合物294aの合成

2-クロロ-3-ニトロピリジン59.0g (0.347モル)、炭酸カリウム105g (0.760モル)、ヨウ化銅(I)9.40g (0.0494モル)、トル

エン300ミリリットルを室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへ、8-アミノキノリン75.0g (0.520モル)を加えた。16時間加熱還流した後、反応液を濾過し、濾液を減圧濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンにて再結晶することにより化合物294aを27.0g (0.102モル)得た。収率29%。

#### 【0186】6-2. 化合物294bの合成

化合物294a 25.0g (93.9ミリモル)をテトラヒドロフラン220ミリリットルに溶解し、室温にて窒素雰囲気下攪拌しているところへヒドロサルファイトナトリウム82.2g (0.472モル)/水420ミリリットルの溶液を滴下し、次いでメタノール70ミリリットルを加えた。1時間攪拌した後、酢酸エチル380ミリリットルを加え、次に炭酸水素ナトリウム24.4g (0.290モル)/水55ミリリットルの溶液を滴下した。更にトリメシン酸クロリド7.55g (28.4ミリモル)/酢酸エチル100ミリリットルの溶液を滴下し、室温下3時間攪拌した。反応液に飽和食塩水を加え、酢酸エチルにて抽出した後、有機相を飽和食塩水で洗浄し、有機相を無水硫酸マグネシウムにより乾燥した。溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=10/1(v/v))にて精製することにより化合物294bを7.86g (9.09ミリモル)得た。収率32%。

#### 【0187】6-3. 例示化合物294の合成

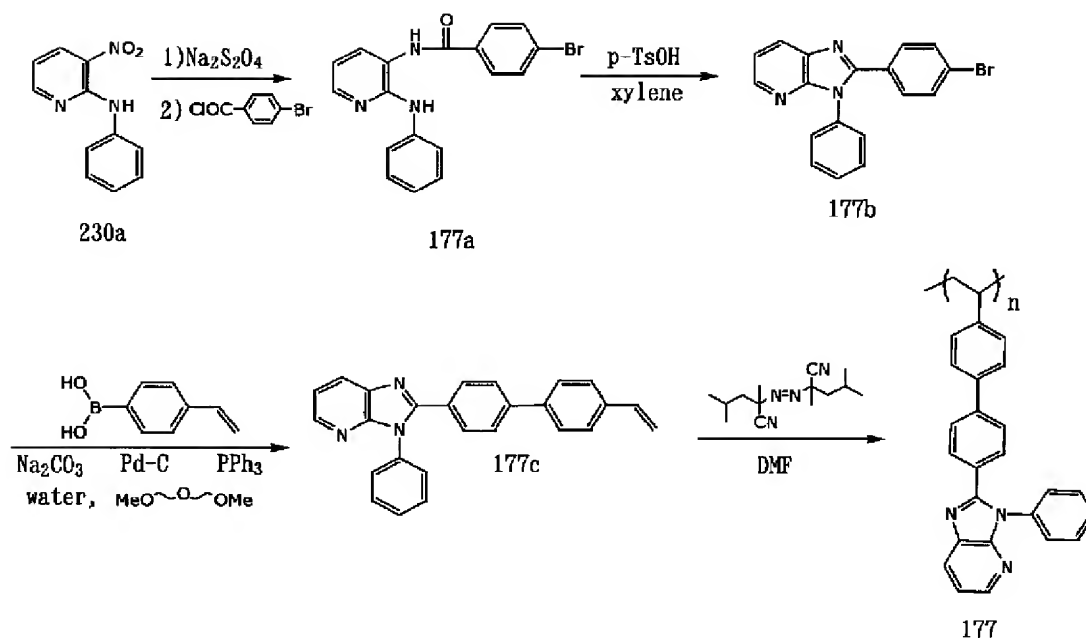
化合物294b 5.00g (5.78ミリモル)、 $p$ -トルエンスルホン酸一水和物0.5g (2.63ミリモル)にキシレン100ミリリットルを加え、窒素雰囲気下5時間加熱還流し、共沸脱水した。反応液を室温まで冷却した後、溶媒を減圧留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム/メタノール=20/1(v/v))にて精製した後、クロロホルム/アセトニトリルにて再結晶することにより例示化合物294を1.87g (2.31ミリモル)得た。収率40%。

融点:384℃

#### 合成例7. 例示化合物177の合成

##### 【0188】

##### 【化111】



## 【0189】7-1. 177aの合成

化合物230a 50.0g (0.232mol)をテトラヒドロフラン500ミリリットルに溶解させ、窒素雰囲気下、室温で攪拌しているところに、ヒドロサルファイトナトリウム200g (1.149mol)／水700ミリリットルの溶液を滴下した。更にメタノール50ミリリットルを加えて、1時間攪拌した。次に、酢酸エチル500ミリリットルを加えて、炭酸水素ナトリウム40g (0.476mol)／水400ミリリットルの溶液を加えた。更に4-ブロモベンゾイルクロリド61g (0.232mol)／酢酸エチル170ミリリットルの溶液を滴下し、室温で5時間攪拌した。酢酸エチルで抽出し、水、飽和食塩水で順次洗浄した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥し、溶媒を減圧留去した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒：クロロホルム)で精製した後、クロロホルム／ヘキサンで再結晶することにより化合物177aを58.9g (0.16mol)得た。収率69%。

## 【0190】7-2. 化合物177bの合成

化合物177a 59.5g (0.16mol)をキシレン1リットルに溶解させ、p-トルエンスルホン酸一水和物9.5g (0.05mol)を加え、窒素雰囲気下、5時間加熱還流しながら共沸脱水を行った。反応液を室温まで冷却した後、析出した固体を濾取し、エタノール／クロロホルムで再結晶することにより、化合物177bを42.8g (0.12mol)得た。収率76%。

## 【0191】7-3. 化合物177cの合成

化合物177b 4.73g (13.52ミリモル)、4-ビニルフェニルボロン酸2.0g (13.52ミリモル)にジエチレングリコールジメチルエーテル100ミリリットルと水50ミリリットルを加え、激しく攪拌した。その中に炭酸ナトリウム2.9g (27.04ミリモル)と炭素に担持させたパラジウム150ミリグラムおよびトリフェニルホスフィン120ミリグラムを加え、5時間加熱還流した。室温に冷却した後不溶部を濾過により除き、溶液を酢酸エチルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥し、溶媒を留去した。クロロホルム／ヘキサンにて再結晶することにより、化合物177aを1.0g (2.68ミリモル)得た。収率20%。

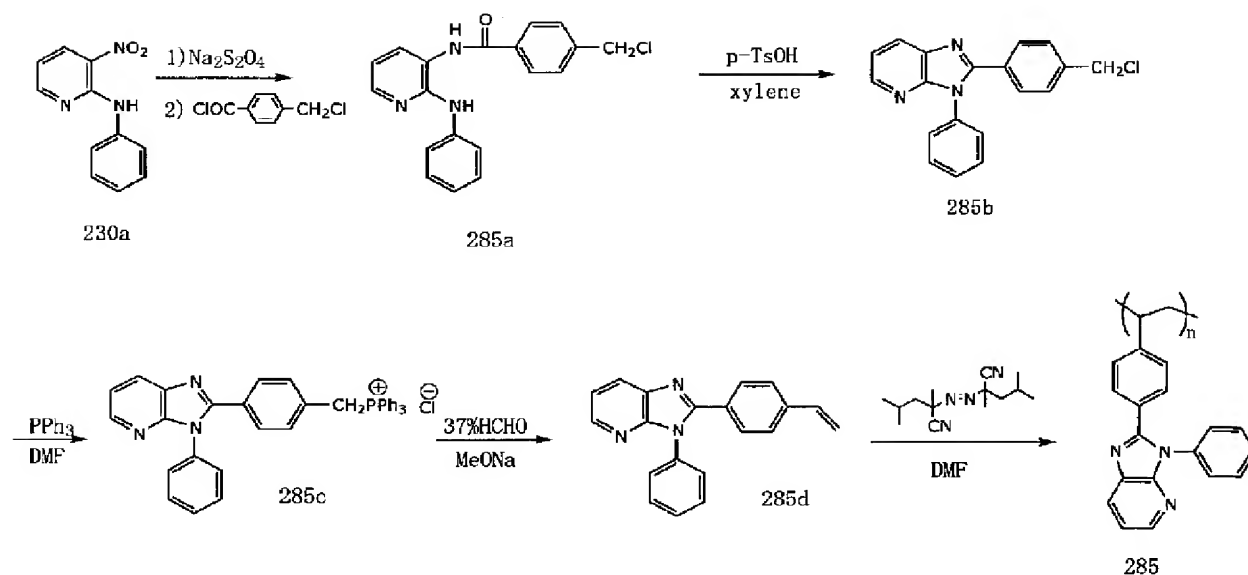
## 【0192】7-4. 例示化合物177の合成

化合物177c 175mg (2.0ミリモル)をジメチルホルムアミド7ミリリットルに溶解し、2,2'-アゾビス(2,4-ジメチルバレロニトリル)(和光純薬)5.8ミリグラムを加え、70℃で8時間過熱攪拌した。室温に冷却後、アセトンから再沈精製することにより例示化合物177を100mg得た。質量平均分子量70000、数平均分子量20000(ポリスチレン換算)であった。

## 合成例8. 例示化合物285の合成

## 【0193】

## 【化112】



#### 【0194】8-1. 化合物285aの合成

化合物230a 50.0 g (0.232モル)をテトラヒドロフラン500ミリリットルに溶解させ、窒素雰囲気下、室温で攪拌しているところに、ハイドロサルファイトナトリウム202 g (1.149モル)／水700ミリリットルの溶液を滴下した。更にメタノール50ミリリットルを加えて、1時間攪拌した。次に、酢酸エチル500ミリリットルを加えて、炭酸水素ナトリウム39 g (0.464モル)／水400ミリリットルの溶液を加えた。更に4-クロロメチルベンゾイルクロリド44 g (0.232モル)／酢酸エチル170ミリリットルの溶液を滴下し、室温で5時間攪拌した。酢酸エチルで抽出し、水、飽和食塩水で順次洗浄した後、無水硫酸マグネシウムで乾燥し、溶媒を減圧留去した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開溶媒：クロロホルム）で精製した後、クロロホルム／ヘキサンで再結晶することにより化合物285aを38.5 g (0.113モル)得た。収率49%。

#### 【0195】7-2. 化合物285bの合成

化合物285a 35 g (0.104モル)をキシレン450ミリリットルに溶解させ、p-トルエンスルホン酸一水和物6.5 g (0.034モル)を加え、窒素雰囲気下、2時間加熱還流しながら共沸脱水を行った。反応液を室温まで冷却した後、析出した固体を濾取し、エタノール／クロロホルムで再結晶することにより、化合物285bを19.95 g (0.0624モル)得た。収率60%。

#### 【0196】7-3. 化合物285cの合成

化合物285b 16 g (0.050モル)とトリフェニルホスフィン26.2 g (0.100モル)をジメチルホルムアミド300ミリリットルに溶解させ、4時間加熱還流した。室温まで冷却すると白色の結晶が析出した。白色結晶を減圧濾過により濾取し、ジエチルエーテルで繰り返し洗浄し、化合物285cを18.92 g (0.033モル)得た。収率65%。

#### 【0197】7-4. 化合物285dの合成

化合物285c 5.8 g (9.96ミリモル)にメタノール40ミリリットルとホルムアルデヒド37%溶液6ミリリットルを加え攪拌しながら0℃まで冷却した。この中に、ナトリウムメトキシド28%溶液をゆっくり滴下し、0℃でさらに3時間攪拌した。生じた沈殿を濾取し、メタノールで繰り返し洗浄したところ、化合物285dを白色粉末として960ミリグラム(3.23ミリモル)得た。収率32%。

#### 7-5. 例示化合物285の合成

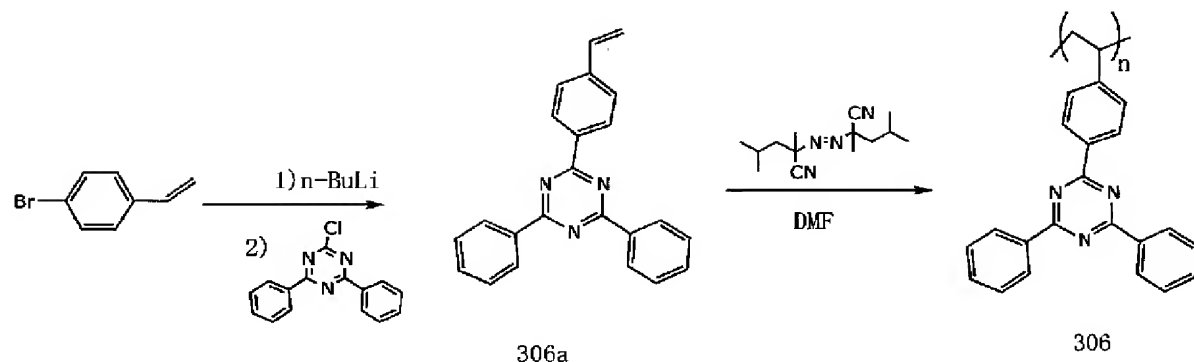
化合物285d 960 mgをジメチルホルムアミド2ミリリットルに溶解し、2,2'-アゾビス(2,4-ジメチルバレロニトリル)（和光純薬社）を2 mg加え、70℃で8時間過熱攪拌した。室温まで冷却した後、アセトンから再沈精製を行い、例示化合物285を白色粉末として454 mg得た。質量平均分子量が5000、数平均分子量が20000であった。

#### 合成例9. 例示化合物306の合成

#### 【0198】

#### 【化113】





【0199】原料となる2-クロロ-4,6-ジフェニル-1,3,5-トリアジン<sup>1)</sup>は日本国特許第3067878号に記載の既知の方法により合成した。

#### 9-1. 化合物306aの合成

4-ブロモスチレン3.67g(20.0ミリモル)をテトラヒドロフラン50ミリリットルに溶解させ、-70℃に冷却した。n-ブチルリチウムのヘキサン溶液(1.6モル/リットル)13.1ミリリットル(21.1ミリモル)をゆっくりと滴下し、その後2-クロロ-4,6-ジフェニル-1,3,5-トリアジン5.35g(20.0ミリモル)をテトラヒドロフラン100ミリリットルに溶解した溶液をゆっくりと滴下し、-70℃で3時間撹拌した。室温まで昇温し、得られた反応混合物を酢酸エチルで抽出し、有機相を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥し、溶媒を留去、乾燥することにより化合物306aを900mg(2.68ミリモル)得た。収率13%。

#### 【0200】9-2. 例示化合物306の合成

化合物306a900mg(2.68ミリモル)をジメチルホルムアミド2ミリリットルに溶解し、2,2'-アゾビス(2,4-ジメチルバレロニトリル)(和光純薬社)を2mg加え、70℃で8時間加熱撹拌した。室温まで冷却した後、アセトンから再沈精製を行い、例示化合物306を白色粉末として760mg得た。質量平均分子量が23000、数平均分子量が12000であった。

【0201】本発明におけるりん光発光性化合物は、多重度の異なる項間の遷移に基づく発光(例えば三重項→一重項)が他の物質よりも強いものと定義する。好ましくは常温におけるりん光量子収率が25%以上のものであり、より好ましくは40%以上のものであり、さらに好ましくは60%のものであり、特に好ましくは80%以上のものであり、例えば金属を含まない有機化合物や金属-ヘテロ原子結合を有する金属錯体、金属-炭素結合を有する有機金属錯体などが挙げられ、下記に記載のオルトメタル化金属錯体が好ましい。次に有機金属錯体について説明する。有機金属錯体は、例えば「有機金属化学-基礎と応用-」p150,232裳華房社山本明夫著(1982年発行)の6ページで定義されているよ

うに、金属と有機基が金属-炭素の直接結合により結びついた化合物のことを指す。次に、本発明で用いるオルトメタル化金属錯体について説明する。オルトメタル化金属錯体とは、例えば「有機金属化学-基礎と応用-」p150,232裳華房社山本明夫著1982年発行、「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds」p71-p77,p135-p146 Springer-Verlag社 H. Yersin著1987年発行等に記載されている化合物群の総称である。金属錯体の中心金属としては、特に限定はないが遷移金属が好ましく、本発明では、中でも特にロジウム、白金、金、イリジウム、ルテニウム、パラジウム等を好ましく用いることができる。この中で特に好ましいものはイリジウムである。

【0202】オルトメタル化金属錯体の金属の価数は特に限定しないが、イリジウムを用いる場合には3価が好ましい。オルトメタル化金属錯体の配位子は、オルトメタル化金属錯体を形成し得る物であれば特に問わないが、例えば、アリール基置換含窒素ヘテロ環(アリール基の置換位置は含窒素ヘテロ環窒素原子の隣接炭素上であり、アリール基としては例えばフェニル基、ナフチル基、アントリル基、ピレニル基などが挙げられ、含窒素ヘテロ環としては、例えば、ピリジン、ピリミジン、ピラジン、ピリダジン、キノリン、イソキノリン、キノキサリン、フタラジン、キナゾリン、ナフチリジン、シンノリン、フェナントロリン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、チアジアゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、フェナントリジンなどが挙げられる)、ヘテロアリール基置換含窒素ヘテロ環(ヘテロアリール基の置換位置は含窒素ヘテロ環窒素原子の隣接炭素上であり、ヘテロアリール基としては例えば前記の含窒素ヘテロ環誘導体を含有する基、チエニル基、フリル基などが挙げられる)、7,8-ベンゾキノリン、ホスフィノアリール、ホスフィノヘテロアリール、ホスフィノキシアリール、ホスフィノキシヘテロアリール、アミノメチルアリール、アミノメチルヘテロアリール等およびこれらの誘導体が挙げられる。アリール基置換含窒素芳香族ヘテロ環、ヘテロアリール基置換含窒素芳香族ヘテロ環、7,8-ベンゾキノリンおよびこ

これらの誘導体が好ましく、フェニルピリジン、チエニルピリジン、7, 8-ベンゾキノリンおよびこれらの誘導体がさらに好ましく、チエニルピリジンおよびその誘導体、7, 8-ベンゾキノリンおよびその誘導体が特に好ましい。

【0203】本発明の化合物は、オルトメタル化金属錯体を形成するに必要な配位子以外に、他の配位子を有していても良い。他の配位子としては種々の公知の配位子が有るが、例えば、「Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds」Springer-Verlag社 H. Yersin 著 1987年発行、「有機金属化学—基礎と応用—」裳華房社山本明夫著 1982年発行等に記載の配位子が挙げられ、好ましくは、ハロゲン配位子（好ましくは塩素配位子）、含窒素ヘテロ環配位子（例えばビピリジル、フェナントロリンなど）、ジケトン配位子であり、より好ましくは塩素配位子、ビピリジル配位子である。

【0204】本発明のオルトメタル化金属錯体が有する配位子の種類は1種類でも良いし、複数の種類があっても良い。錯体中の配位子の数は、好ましくは1~3種類であり、特に好ましくは1, 2種類であり、さらに好ましくは1種類である。

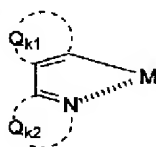
【0205】本発明のオルトメタル化金属錯体の炭素数は、好ましくは5~100、より好ましくは10~80、さらに好ましくは14~50である。

【0206】本発明のオルトメタル化金属錯体の好ましい形態は、下記一般式（K-I）で表される部分構造を有する化合物またはその互変異性体である。

【0207】

【化114】

一般式(K-I)



【0208】式中、Mは遷移金属を表す。Q<sub>k1</sub>は5員または6員の芳香族環を形成するに必要な原子群を表す。Q<sub>k2</sub>は5員または6員の芳香族アゾール環を形成するに必要な原子群を表す。Mで表される遷移金属として好ましくは、ロジウム、白金、金、イリジウム、ルテニウム、パラジウムであり、より好ましくはロジウム、白金、イリジウムであり、更に好ましくは白金、イリジウ

ムであり、特に好ましくはイリジウムである。Q<sub>k1</sub>で形成される5員または6員の芳香族環は、芳香族炭化水素環、芳香族ヘテロ環のいずれでもよく、例えばベンゼン、ナフタレン、アントラセン、ピレン、ピリジン、キノリン、イソキノリン、ピリダジン、ピリミジン、ピラジン、チオフェン、フラン、ピロール、ピラゾール、イミダゾール、チアゾール、オキサゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、キノキサリン、フタラジン、ナフチリジン、シンノリン、フェナントロリン、ベンゾチアゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾイミダゾール、フェナントリジンなどが挙げられ、好ましくはベンゼン、ナフタレン、ピリジン、キノリン、イソキノリン、チオフェン、フランであり、より好ましくはベンゼン、ナフタレン、ピリジン、キノリン、イソキノリン、チオフェンであり、更に好ましくはベンゼン、ナフタレン、チオフェンである。

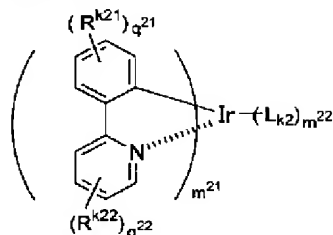
【0209】Q<sub>k2</sub>で形成される5員または6員の芳香族アゾール環としては、例えばピリジン、キノリン、イソキノリン、ピリダジン、ピリミジン、ピリダジン、ピラゾール、イミダゾール、チアゾール、オキサゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、キノキサリン、フタラジン、ナフチリジン、シンノリン、フェナントロリン、ベンゾチアゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾイミダゾール、フェナントリジンなどが挙げられ、好ましくはピリジン、キノリン、イソキノリン、ピラゾール、ピリダジンであり、より好ましくはピリジン、キノリン、イソキノリン、ピラゾールであり、更に好ましくはピリジン、キノリン、イソキノリンである。Q<sub>k1</sub>、Q<sub>k2</sub>で形成される環は置換基を有してもよく、置換基としては一般式（I）のRで表される基として挙げたものが適用でき、また好ましい範囲も同様である。また置換基同士が連結して環を形成しても良い。また、一般式（K-I）で表される部分構造を有する化合物またはその互変異性体は、化合物中に遷移金属を一つ有しても良いし、また、2つ以上有するいわゆる複核錯体であっても良い。他の金属原子を同時に含有していても良い。

【0210】一般式（K-I）で表される部分構造を有する化合物のうち、より好ましくは下記一般式（K-II）または（K-III）で表される化合物またはその互変異性体である。

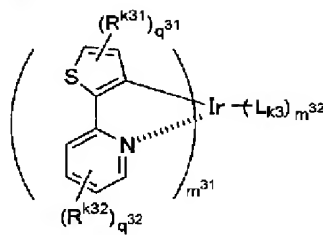
【0211】

【化115】

一般式(K-II)



一般式(K-III)



【0212】式中、 $R^{k21}$ 、 $R^{k22}$ 、 $R^{k31}$ および $R^{k32}$ はそれぞれ置換基を表す。 $q^{21}$ 、 $q^{22}$ および $q^{32}$ はそれぞれ0～4の整数を表し、 $q^{31}$ は0～2の整数を表す。 $q^{21}$ 、 $q^{22}$ 、 $q^{31}$ 、 $q^{32}$ が2以上の場合、複数の $R^{k21}$ 、 $R^{k22}$ 、 $R^{k31}$ 、 $R^{k32}$ はそれぞれ同一または互いに異なっても良い。

【0213】 $R^{k21}$ 、 $R^{k22}$ 、 $R^{k31}$ 、 $R^{k32}$ で表される置換基としては、例えば一般式(I)におけるRで表される基として挙げたものが適用できる。 $R^{k21}$ 、 $R^{k22}$ 、 $R^{k31}$ 、 $R^{k32}$ は更に置換されてもよい。また、置換基同士が結合して縮環構造を形成しても良い。

【0214】 $R^{k21}$ 、 $R^{k22}$ 、 $R^{k31}$ 、 $R^{k32}$ としては好ましくはアルキル基、アリール基、ヘテロ環基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、結合して縮環構造を形成する基が好ましく、より好ましくはアルキル基、アリール基、フッ素原子、結合して芳香族縮環構造を形成する基である。 $q^{21}$ 、 $q^{22}$ 、 $q^{31}$ 、 $q^{32}$ としては0、1、2が好ましく、より好ましくは $q^{21} + q^{22} = 0$ 、1、2、 $q^{31} + q^{32} = 0$ 、1、2である。

【0215】 $L_{k2}$ および $L_{k3}$ はそれぞれ配位子を表す。配位子としては前記オルトメタル化金属錯体を形成するのに必要な配位子、およびその他の配位子で説明した配位子が挙げられる。 $L_{k2}$ 、 $L_{k3}$ はオルトメタル化イリジウム錯体を形成するのに必要な配位子、含窒素ヘテロ環配位子、ジケトン配位子、ハロゲン配位子が好ましく、より

好ましくはオルトメタル化イリジウム錯体を形成するのに必要な配位子、ジケトン配位子、ビピリジル配位子である。

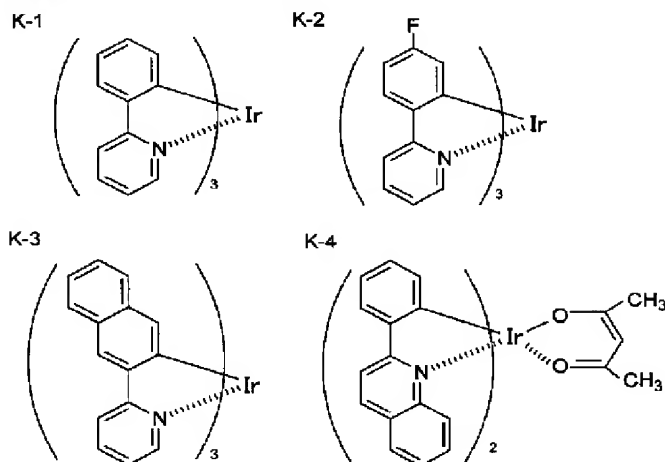
【0216】 $m^{21}$ および $m^{31}$ はそれぞれ1、2、3を表し、好ましくは2、3であり、より好ましくは3である。 $m^{22}$ および $m^{32}$ は、それぞれ0～5の整数を表し、好ましくは0、1、2であり、より好ましくは0、1である。 $m^{21}$ と $m^{22}$ 、 $m^{31}$ と $m^{32}$ の数の組み合わせは、一般式(K-II)、(K-III)で表される金属錯体が中性錯体となる数の組み合わせが好ましい。

【0217】本発明のオルトメタル化金属錯体は一般式(K-1)の繰返し単位をひとつ有する、いわゆる低分子化合物であっても良く、また、一般式(K-1)の繰返し単位を複数個有するいわゆる、オリゴマー化合物、ポリマー化合物(平均分子量( $M_w$ :ポリスチレン換算)は好ましくは1000～5000000、より好ましくは2000～1000000、さらに好ましくは3000～100000である。)であっても良い。本発明で用いるオルトメタル化金属錯体は低分子化合物が好ましい。

【0218】次に本発明に用いるりん光発光性化合物の例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

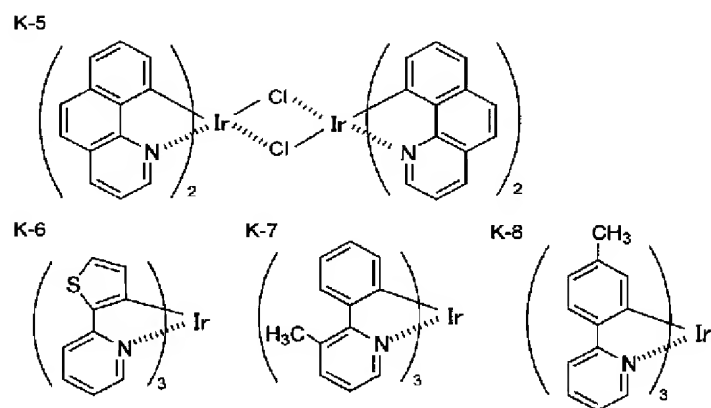
【0219】

【化116】



【0220】

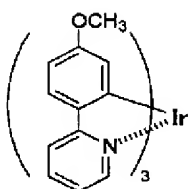
【化117】



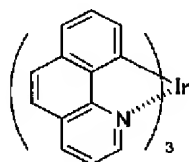
【0221】

【化118】

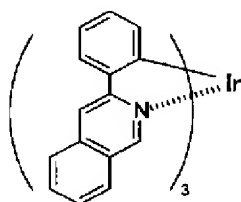
K-9



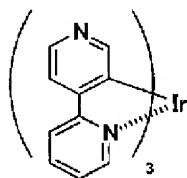
K-10



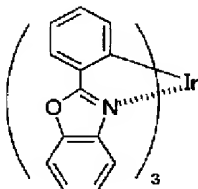
K-11



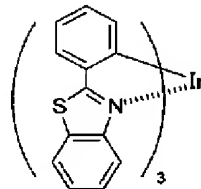
K-12



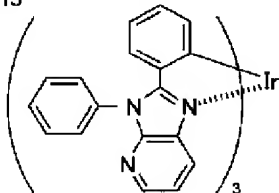
K-13



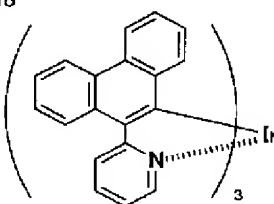
K-14



K-15

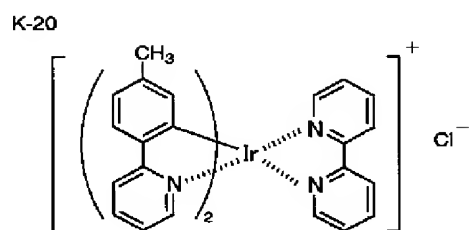
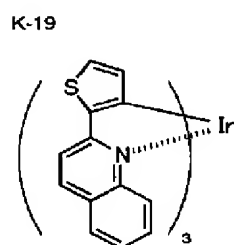
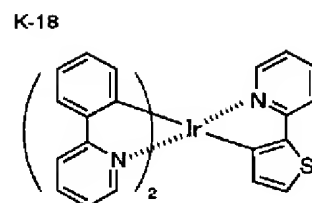
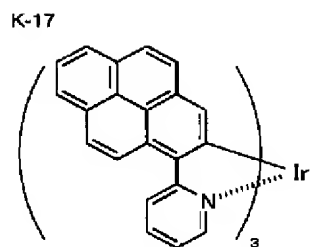


K-16



【0223】

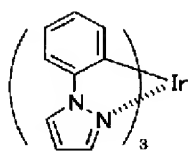
【化120】



【0224】

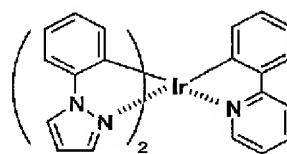
【化121】

K-21

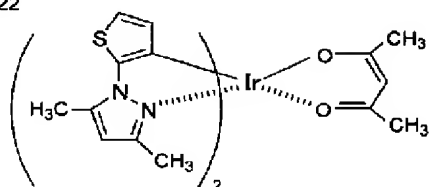


【化122】

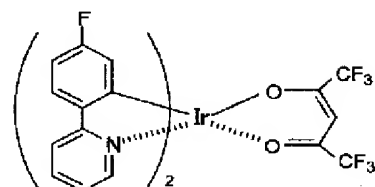
K-25



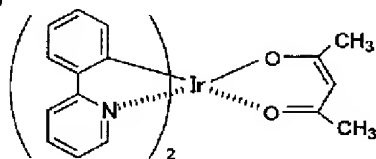
K-22



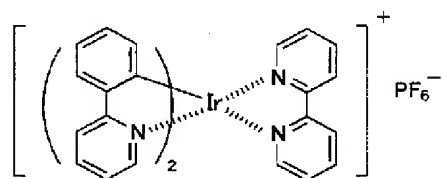
K-26



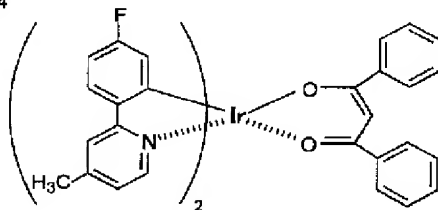
K-23



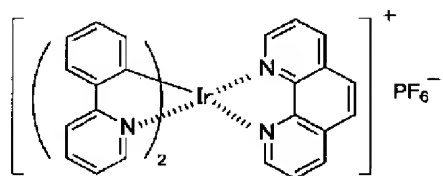
K-27



K-24



K-28

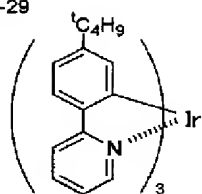


【0225】

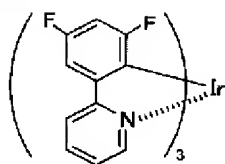
【0226】

【化123】

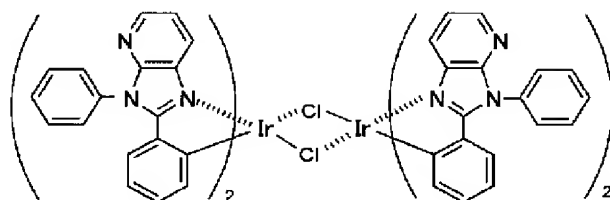
K-29



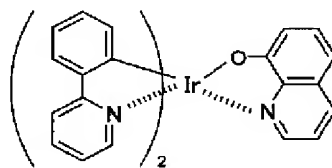
K-30



K-31



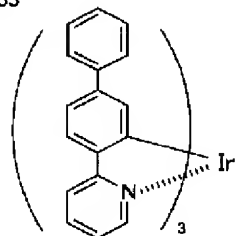
K-32



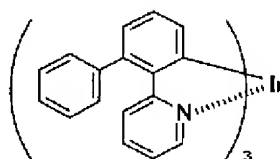
【0227】

【化124】

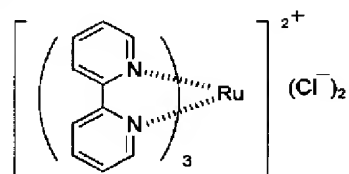
K-33



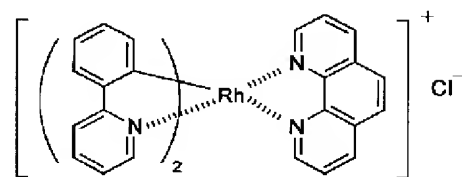
K-34



K-35



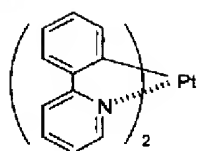
K-36



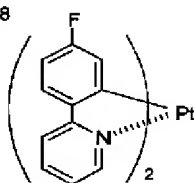
【0228】

【化125】

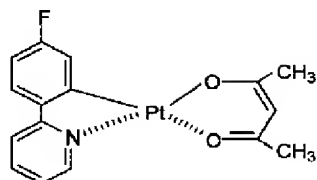
K-37



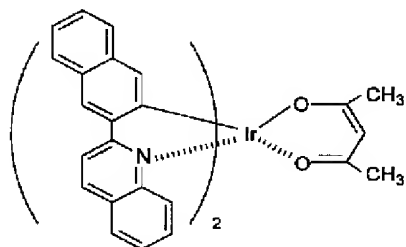
K-38



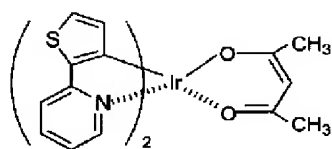
K-39



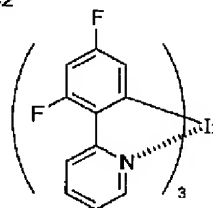
K-40



K-41



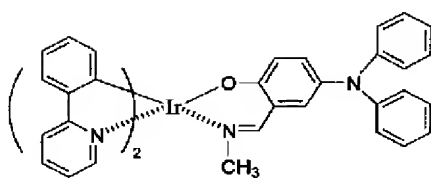
K-42



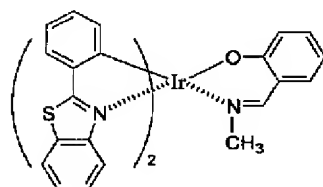
【0229】

【化126】

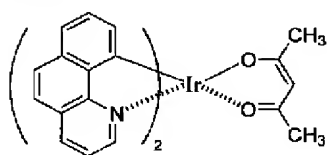
K-43



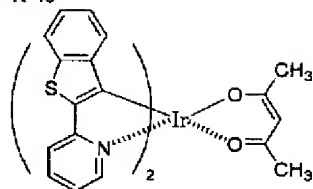
K-44



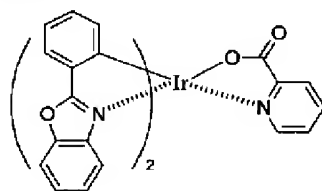
K-45



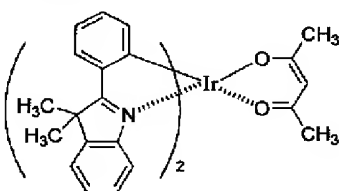
K-46



K-47



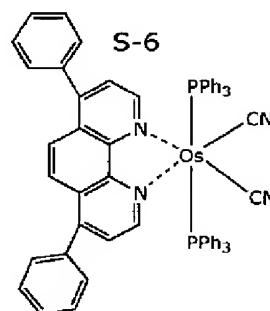
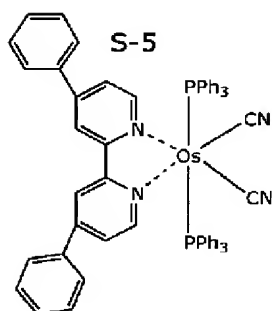
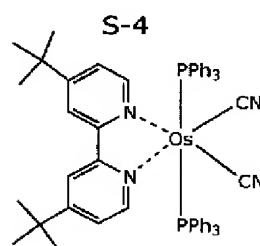
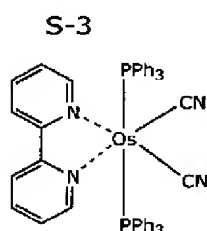
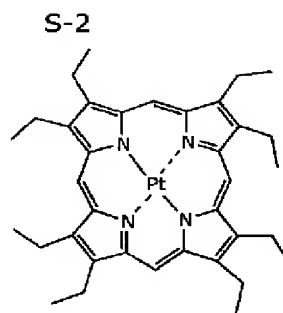
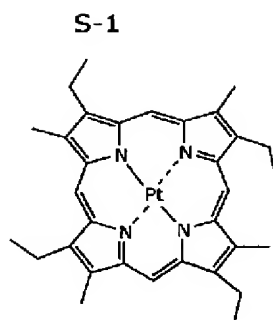
K-48



【0230】

【化127】





【0231】本発明で用いるオルトメタル化金属錯体は Inorg.Chem. 1991年, 30号, 1685頁., 同 1988年, 27号, 3464頁., 同 1994年, 33号, 545頁. Inorg.Chim.Acta 1991年, 181号, 245頁. J.Organomet.Chem. 1987年, 335号, 293頁. J.Am.Chem.Soc. 1985年, 107号, 1431頁. 等、種々の公知の手法で合成することができる。次に、本発明の化合物を含有する発光素子に関して説明する。本発明の化合物を含有する発光素子の有機層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法、インクジェット法、印刷法、転写法などの方法が用いられ、特性面、製造面で抵抗加熱蒸着、コーティング法が好ましい。

【0232】本発明の発光素子は陽極、陰極の一对の電極間に少なくとも発光層を含む複数の有機化合物膜を形成した素子であり、発光層のほか正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、保護層などを有してもよく、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたものであってもよい。各層の形成にはそれぞれ種々の材料を用いることができる。

【0233】陽極は正孔注入層、正孔輸送層、発光層な

どに正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などを用いることができ、好ましくは仕事関数が4 eV以上の材料である。具体例としては酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ (ITO) 等の導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物または積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなどの有機導電性材料、およびこれらとITOとの積層物などが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高導電性、透明性等の点からITOが好ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50 nm～1 μmであり、更に好ましくは100 nm～500 nmである。

【0234】陽極は通常、ソーダライムガラス、無アルカリガラス、透明樹脂基板などの上に層形成したものが用いられる。ガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライ

ムガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートを施したものを使用することが好ましい。基板の厚みは、機械的強度を保つのに十分であれば特に制限はないが、ガラスを用いる場合には、通常0.2mm以上、好ましくは0.7mm以上のものを用いる。陽極の作製には材料によって種々の方法が用いられるが、例えばITOの場合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、化学反応法（ゾルゲル法など）、酸化インジウムスズの分散物の塗布などの方法で膜形成される。陽極は洗浄その他の処理により、素子の駆動電圧を下げたり、発光効率を高めることも可能である。例えばITOの場合、UV-オゾン処理、プラズマ処理などが効果的である。

【0235】陰極は電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送層、発光層などの負極と隣接する層との密着性やイオン化ポテンシャル、安定性等を考慮して選ばれる。陰極の材料としては金属、合金、金属ハロゲン化物、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物を用いることができ、具体例としてはアルカリ金属（例えばLi、Na、K、Cs等）及びそのフッ化物、酸化物、アルカリ土類金属（例えばMg、Ca等）及びそのフッ化物、酸化物、金、銀、鉛、アルニウム、ナトリウム-カリウム合金またはそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属、インジウム、イッテルビウム等の希土類金属等が挙げられ、好ましくは仕事関数が4eV以下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金またはそれらの混合金属等である。陰極は、上記化合物及び混合物の単層構造だけでなく、上記化合物及び混合物を含む積層構造を取ることでもできる。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10nm～5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50nm～1μmであり、更に好ましくは100nm～1μmである。陰極の作製には電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法などの方法が用いられ、金属を単体で蒸着すること、二成分以上を同時に蒸着することでもできる。さらに、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調製した合金を蒸着させてもよい。陽極及び陰極のシート抵抗は低い方が好ましく、数百Ω/□以下が好ましい。

【0236】発光層の材料は、電界印加時に陽極または正孔注入層、正孔輸送層から正孔を注入することができると共に陰極または電子注入層、電子輸送層から電子を注入することができる機能や、注入された電荷を移動させる機能、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有する層を形成することができるものであれば何でもよい。好ましくは発光層に本発明のオルトメタル

化金属錯体を含有するものであるが、他の発光材料を併用して用いることもできる。例えばベンゾオキサゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾチアゾール、スチリルベンゼン、ポリフェニル、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、ナフタリイミド、クマリン、ペリレン、ペリノン、オキサジアゾール、アルダジン、ピラリジン、シクロペンタジエン、ビススチリルアントラセン、キナクリドン、ピロロピリジン、チアジアゾロピリジン、シクロペンタジエン、スチリルアミンおよびこれらの誘導体、芳香族ジメチリデン化合物、8-キノリノールおよびその誘導体の金属錯体や希土類錯体に代表される各種金属錯体等、ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン、ポリチエニレンビニレン等のポリマー化合物等が挙げられる。発光層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm～5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm～1μmであり、更に好ましくは10nm～500nmである。発光層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）、LB法、インクジェット法、印刷法、転写法などの方法が用いられ、好ましくは抵抗加熱蒸着、コーティング法である。発光層は上述した材料の1種または2種からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。

【0237】正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれか有しているものであればよい。その具体例としては、カルバゾール、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、イミダゾール、ポリアリーールアルカン、ピラゾリン、ピラゾロン、フェニレンジアミン、アリーールアミン、アミノ置換カルコン、スチリルアントラセン、フルオレノン、ヒドラゾン、スチルベン、シラザンおよびこれらの誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ポルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ（N-ビニルカルバゾール）およびその誘導体、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー、ポリチオフェン等の導電性高分子オリゴマー、カーボン膜等が挙げられる。正孔注入層、正孔輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1nm～5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5nm～1μmであり、更に好ましくは10nm～500nmである。正孔注入層、正孔輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。正孔注入層、正孔輸送層の形成方法としては、真空蒸着法、LB法、インクジェット法、印刷法、転写法、前記正孔注入輸送剤を溶媒に溶解または分

散させてコーティングする方法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）などが用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

【0238】電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入された正孔を障壁する機能のいずれかが有しているものであればよい。その具体例としては、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、フルオレノン、アントラキノジメタン、アントロン、ジフェニルキノン、チオピランジオキシド、カルボジイミド、フルオレニリデンメタン、ジスチルピラジン、ナフタレンやペリレン等の芳香環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニンおよびこれらの誘導体、8-キノリノールおよびその誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体等が挙げられる。電子注入層、電子輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm～1 μmであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。電子注入層、電子輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であってもよい。電子注入層、電子輸送層の形成方法としては、真空蒸着法、LB法、インクジェット法、印刷法、転写法、前記電子注入輸送剤を溶媒に溶解または分散させてコーティングする方法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）などが用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、正孔注入輸送層の場合に例示したものが適用できる。

【0239】保護層の材料としては水分や酸素等の素子劣化を促進するものが素子内に入ることを抑止する機能を有しているものであればよい。その具体例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Ni等の金属、MgO、SiO、SiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、

TiO<sub>2</sub>等の金属酸化物、SiNx、SiNxOyなどの窒化物、MgF<sub>2</sub>、LiF、AlF<sub>3</sub>、CaF<sub>2</sub>等の金属フッ化物、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のモノマーを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質等が挙げられる。保護層の形成方法についても特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE（分子線エピタキシー）法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法（高周波励起イオンプレーティング法）、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法、コーティング法、インクジェット法、印刷法、転写法を適用できる。

#### 【0240】

【実施例】以下に実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれにより限定されるものではない。

#### 実施例1

25 mm×25 mm×0.7 mmのガラス基板上にITOを150 nmの厚さで製膜したもの（東京三容真空（株）製）を透明支持基板とした。この透明支持基板をエッチング、洗浄後、銅フタロシアニンを約10 nm蒸着した。次にTPD（N,N'-ビス（3-メチルフェニル）-N,N'-ジフェニルベンジジン）約40 nm、表1記載の発光層（ホスト材料と発光材料の質量比は、およそ94:6）を約20 nm、バソクプロインを約6 nm、Alq（トリス（8-ヒドロキシキノリナト）アルミニウム）約20 nmを順に10<sup>-3</sup>～10<sup>-4</sup> Paの真空中で、基板温度室温の条件下蒸着した。有機薄膜上にパターニングしたマスク（発光面積が5 mm×4 mmとなるマスク）を設置し、蒸着装置内でマグネシウム：銀=10:1を250 nm共蒸着した後、銀300 nmを蒸着し、EL素子を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧をEL素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、また発光波長については浜松ホトニクス社製スペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定した。その結果を表1に示す。

#### 【0241】

#### 【表1】

表 1

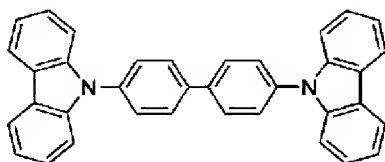
素子 No.	発光層ホスト材料	発光層発光材料	素子作製直後の EL 特性			85℃保存後 EL 特性	
			発光 $\lambda$ max (nm)	印加電圧 12V での輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	外部量子効率 (%)	印加電圧 12V での輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	発光面状*
101(比較例)	CBP	K-1	513	36600	8.1	11700	×
102(比較例)	CBP	K-6	552	29800	6.8	8500	×
103(本発明)	例示化合物 6 1	K-1	513	38200	10.2	31000	○
104(本発明)	例示化合物 6 1	K-6	554	30800	7.3	28800	○
105(本発明)	例示化合物 6 2	K-1	514	37400	9.3	30600	○
106(本発明)	例示化合物 6 2	K-6	553	31000	7.6	29000	○
107(本発明)	例示化合物 2 0 5	K-1	514	37000	9.0	34400	○
108(本発明)	例示化合物 2 0 5	K-2	488	27100	7.0	24900	○
109(本発明)	例示化合物 2 0 5	K-6	552	30800	7.3	26800	○
110(本発明)	例示化合物 2 4 6	K-1	513	38200	8.6	32200	○
111(本発明)	例示化合物 2 9 1	K-1	514	54000	14.6	48000	○
112(本発明)	例示化合物 2 9 1	K-6	553	42200	8.3	39300	○
113(本発明)	例示化合物 2 9 1	K-4 0	633	30500	7.1	26200	○
114(本発明)	例示化合物 2 9 7	K-1	515	35900	8.0	30700	○
115(本発明)	例示化合物 2 9 7	K-6	555	29900	6.9	26700	○

\*○：ダークスポット（未発光部）発生小、×：ダークスポット発生大

【0242】

【化128】

CBP



【0243】また、これらの素子をアルゴンガスで置換したオートクレーブ中に封入し、85℃の加熱条件下3日間保存した後に、同様の輝度測定・および発光面状観察を行った結果も表1に示す。表1の結果から、文献化合物であるCBPや本発明の化合物を用いた素子では、外部量子効率5%以上と高い効率を示しているが、CBPを用いた素子では高温保存した後に大幅な輝度低下およびダークスポット（未発光部）の発生が多く見られるのに対し、本発明の化合物を用いた素子では、輝度の低下も少なく、素子の発光面状も良好で、素子の保存耐久性が大幅に向上していることがわかる。

表 2

素子 No.	ホスト材料	発光材料	素子作製直後の EL 特性			85℃保存後 EL 特性	
			発光 $\lambda$ max (nm)	印加電圧 18V での輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	外部量子効率 (%)	印加電圧 18V での輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	発光面状*
201(比較例)	—	クマリン-6	527	2750	0.7	520	×
202(比較例)	CBP	クマリン-6	526	2300	0.6	340	×
203(本発明)	例示化合物 6 1	K-1	513	14800	3.5	11700	○
204(本発明)	例示化合物 6 3	K-1	514	17200	3.9	13400	○
205(本発明)	例示化合物 6 3	K-4 1	568	12900	3.0	9800	○
206(本発明)	例示化合物 6 5	K-1	513	16400	3.7	12300	○
207(本発明)	例示化合物 1 5 2	K-1	512	15600	3.6	11900	○
208(本発明)	例示化合物 1 9 5	K-1	512	18100	3.9	14100	○
209(本発明)	例示化合物 2 3 6	K-1	513	16900	3.6	13400	○
210(本発明)	例示化合物 2 8 1	K-1	513	17500	4.0	14000	○

\*○：ダークスポット（未発光部）発生小、×：ダークスポット発生大

【0244】実施例2．実施例1と同様にエッチング、洗浄したITOガラス基板上に、ポリ(N-ビニルカルバゾール(PVK))40mg、2-(4-tert-ブチルフェニル)-5-(4-ビフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(PBD)12mg、クマリン-6 1mgを1,2-ジクロロエタン3mlに溶解した溶液をスピコートした。このときの有機層の膜厚は約120nmであった。次いで実施例1と同様に陰極を蒸着し、EL素子201を作製した。素子201に対して、クマリン-6の代わりに表2に示した化合物1mgを添加した以外は、201と全く同じ組成のEL素子202～210を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧をEL素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、また発光波長については浜松ホトニクス社製スペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定した。その結果を表2に示す。

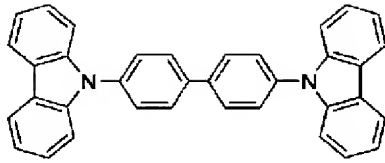
【0245】

【表2】

【0246】

【化129】

CBP



【0247】

【化130】

表3

素子 No.	発光層ホスト高分子	発光層 発光材料	素子作製直後のEL特性			85℃保存後EL特性	
			発光λ <sub>max</sub> (nm)	印加電圧15V での輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	外部量子 効率 (%)	印加電圧15V での輝度(c d/m <sup>2</sup> )	発光面状*
301(比較例)	ポリビニルカルbazol	K-1	513	500	0.64	385	×
302(本発明)	例示化合物169	K-1	514	8750	2.8	6950	○
303(本発明)	例示化合物172	K-1	516	6900	3.2	4920	○
304(本発明)	例示化合物177	K-1	516	18900	3.5	17500	○
305(本発明)	例示化合物177	K-2	488	14300	2.9	13200	○
306(本発明)	例示化合物177	K-40	633	8990	2.2	7600	○
307(本発明)	例示化合物285	K-1	513	19200	4.6	17650	○
308(本発明)	例示化合物285	K-2	490	18750	3.2	16900	○
309(本発明)	例示化合物285	K-40	634	7880	2.8	6940	○
310(本発明)	例示化合物304	K-1	511	11150	3.3	9380	○
311(本発明)	例示化合物306	K-1	514	17800	3.6	16900	○
312(本発明)	例示化合物306	K-2	489	14320	2.9	13000	○
313(本発明)	例示化合物306	K-40	631	6900	2.2	5800	○

\*○：ダークスポット（未発光部）発生小、×：ダークスポット発生大

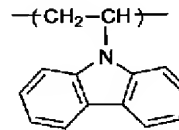
【0248】表2の結果から明らかなように、本発明の素子では通常発光効率が低い塗布型素子においても高い発光輝度、発光効率を示し、また、保存耐久性に関しても優れていることがわかる。

【0249】実施例3. 実施例1と同様にエッチング、洗浄したITOガラス基板上に、ポリエチレンジオキシチオフェンにポリスチレンスルホン酸をドーブしたホール注入層を敷設した後、表3記載のホスト高分子材料を26mg、ビスカルバゾリルビフェニル(CBP)20mg、表3記載の発光材料1mgを1,2-ジクロロエタン3.1mlに溶解した溶液をスピコートした。このときの有機層の膜厚は約120nmであった。次いで実施例1と同様に陰極を蒸着し、EL素子301~313を作製した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400型を用いて、直流定電圧をEL素子に印加し発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、また発光波長については浜松ホトニクス社製スペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定した。その結果を表3に示す。

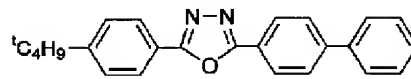
【0250】

【表3】

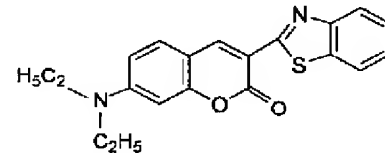
PVK

重量平均分子量 23,000  
(ポリスチレン換算)

PBP



クマリン6

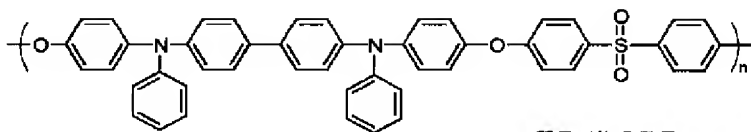


【0251】表3の結果から明らかな様に、本発明の素子では通常発光効率が低い塗布型素子においても高い発光輝度、発光効率を示し、また、保存耐久性に関しても優れていることがわかる。

【0252】実施例4. ポリカーボネートフィルム上にSiO<sub>x</sub>N<sub>y</sub> (x=約0.7、y=約0.3)200nm、ITO200nmをこの順にスパッタした膜を基板とし、この上にPTPDES/TBPA(Tris(4

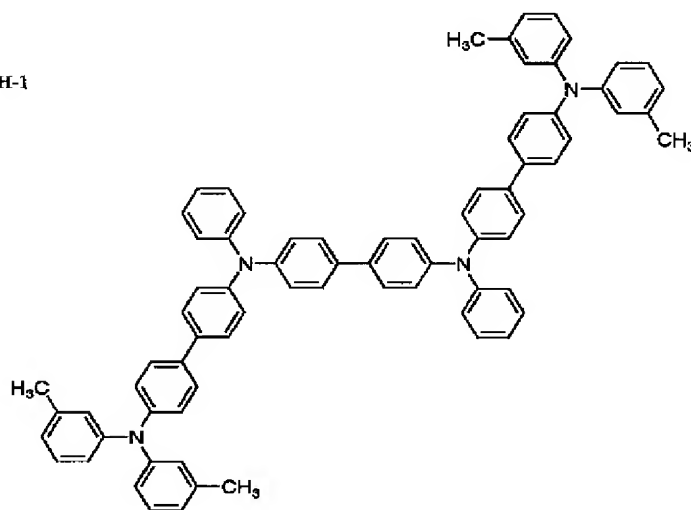
-bromophenyl) aminium hexachloroantimonate) (20mg/5mg) を1, 2-ジクロロエタン2.5mlに溶解した溶液を膜厚が約20nmになるようにスピコートした。この上に化合物H-1約35nmを蒸着した後、例示化合物265および例示化合物K-2を15:2の比率で36nm共蒸着し、続いて例示化合物377を18nm

PTPDES



質量平均分子量 20,000

H-1



【0254】この発光素子に、東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400を用いて、直流定電圧を印加し、発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、発光波長とCIE色度座標を浜松ホトニクス社製スペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定した結果、最大発光波長484nm、色度座標(x, y) = (0.19, 0.51)で、外部量子効率12%という高い発光効率を得た。この素子は可撓性があり、フレキシブルな発光素子で高効率を実現できる。

【0255】実施例5. 洗浄したITO基板を蒸着装置に入れ、TPDを50nm蒸着し、その上に例示化合物75および化合物K-40を17:1の比率で30nm共蒸着し、さらにこの上に例示化合物381および例示化合物K-42を17:1の比率で2nm共蒸着し、さらにこの上に例示化合物377を10nm、例示化合物291を26nm蒸着した。この有機薄膜上にパターンニングしたマスク(発光面積が4mm×5mmとなるマスク)を装着し、フッ化リチウム2nmを蒸着した後、アルミニウムを400nm蒸着して、発光素子を作製し

m、例示化合物291を18nm蒸着した。この有機薄膜上にパターンニングしたマスク(発光面積が2mm×2mmとなるマスク)を装着し、LiFを1nm、Alを200nm蒸着した。さらにプラズマCVDにより窒化ケイ素を封止膜として付設して、発光素子を作成した。

【0253】

【化131】

た。

【0256】この発光素子に、東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400を用いて、直流定電圧を印加し、発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM-8、発光波長とCIE色度座標を浜松ホトニクス社製スペクトルアナライザーPMA-11を用いて測定したところ、色度座標(x, y) = (0.33, 0.35)の白色発光が得られ、最高輝度は59000cd/m<sup>2</sup>、外部量子効率は13.7%であった。

【0257】本実施例の結果より、本発明の発光素子は、従来低効率であった白色発光素子においても高効率発光を得ることができ、また白色の色純度も非常に優れた発光素子を作成することができる。

【0258】

【発明の効果】本発明の素子は高い発光輝度、発光効率を示し、保存耐久性に関しては、高温保存した後に輝度低下も少なく、かつ、発光面状も良好で、素子の保存耐久性が大幅に改善される。また通常発光効率が低い塗布型素子においても同様な効果が得られている。

【手続補正書】

【提出日】平成13年11月8日(2001.11.8)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項5

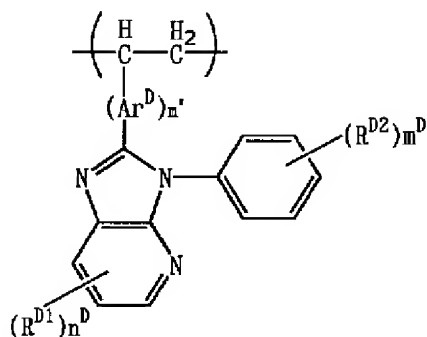
【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項5】 下記一般式(D)で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重合体。

【化2】

一般式(D)



(式中、 $Ar^D$ はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 $R^{D1}$ 、 $R^{D2}$ は水素原子または置換基を表す。 $n^D$ は0～3の整数を表し、 $m^D$ は0～5の整数を表す。 $n'$ は0または1を表す。)

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項6

【補正方法】変更

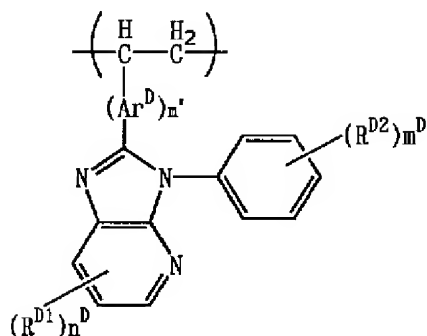
【補正内容】

【請求項6】 請求項1～3におけるヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物が下記一般式

(D)で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重合体であることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の発光素子。

【化3】

一般式(D)



(式中、 $Ar^D$ はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 $R^{D1}$ 、 $R^{D2}$ は水素原子または置換基を表す。 $n^D$ は0～3の整数を表し、 $m^D$ は0～5の整数を表す。 $n'$ は0または1を表す。)

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項7

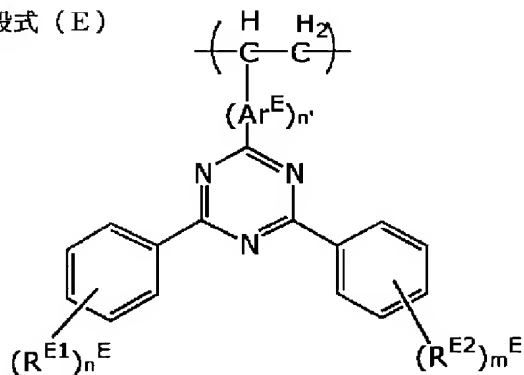
【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項7】 下記一般式(E)で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重合体。

【化4】

一般式(E)



(式中、 $Ar^E$ はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 $R^{E1}$ 、 $R^{E2}$ は水素原子または置換基を表す。 $n^E$ および $m^E$ は0～5の整数を表す。 $n'$ は0または1を表す。)

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項8

【補正方法】変更

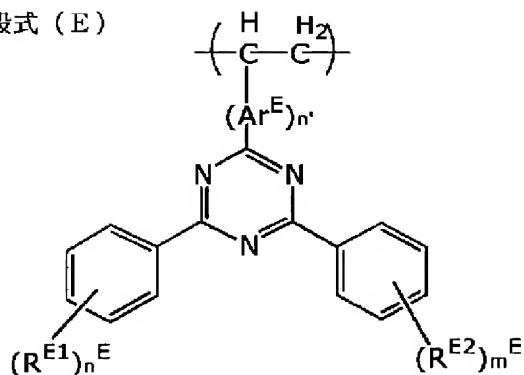
【補正内容】

【請求項8】 請求項1～3におけるヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物が下記一般式

(E)で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重合体であることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の発光素子。

【化5】

一般式 (E)



(式中、 $Ar^E$ はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 $R^{E1}$ 、 $R^{E2}$ は水素原子または置換基を表す。 $n^E$ および $m^E$ は0～5の整数を表す。 $n'$ は0または1を表す。)

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0009

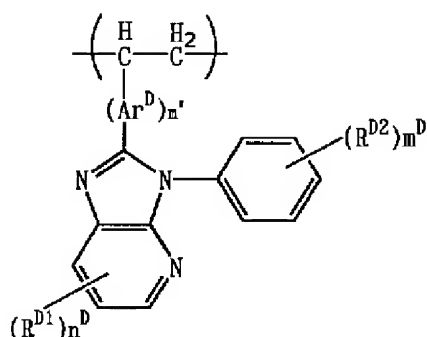
【補正方法】変更

【補正内容】

【0009】

【化7】

一般式 (D)



【手続補正6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0010

【補正方法】変更

【補正内容】

【0010】(式中、 $Ar^D$ はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 $R^{D1}$ 、 $R^{D2}$ は水素原子または置換基を表す。 $n^D$ は0～3の整数を表し、 $m^D$ は0～5の整数を表す。 $m'$ は0または1を表す。)

(6)(1)～(3)におけるヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物が下記一般式(D)で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重合体であることを特徴とする(1)～(3)のいずれかに記載の発光素子。

【手続補正7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0011

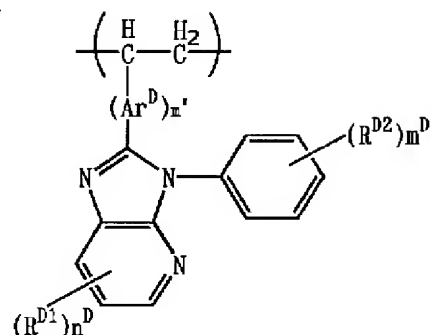
【補正方法】変更

【補正内容】

【0011】

【化8】

一般式 (D)



【手続補正8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0012

【補正方法】変更

【補正内容】

【0012】(式中、 $Ar^D$ はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 $R^{D1}$ 、 $R^{D2}$ は水素原子または置換基を表す。 $n^D$ は0～3の整数を表し、 $m^D$ は0～5の整数を表す。 $m'$ は0または1を表す。)

(7)下記一般式(E)で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重合体。

【手続補正9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0013

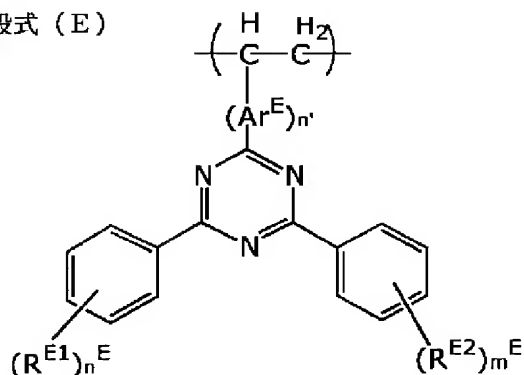
【補正方法】変更

【補正内容】

【0013】

【化9】

一般式 (E)



【手続補正10】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0014



【補正方法】変更

【補正内容】

【0014】（式中、 $\text{Ar}^E$ はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 $\text{R}^{E1}$ 、 $\text{R}^{E2}$ は水素原子または置換基を表す。 $n^E$ および $m^E$ は0～5の整数を表す。 $n'$ は0または1を表す。）

（8）（1）～（3）におけるヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物が下記一般式（E）で表される繰り返し単位を少なくとも1つ含む重合体であることを特徴とする（1）～（3）のいずれかに記載の発光素子。

【手続補正11】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0015

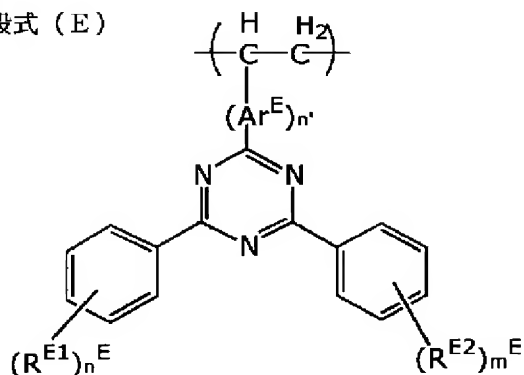
【補正方法】変更

【補正内容】

【0015】

【化10】

一般式（E）



【手続補正12】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0016

【補正方法】変更

【補正内容】

【0016】（式中、 $\text{Ar}^E$ はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。 $\text{R}^{E1}$ 、 $\text{R}^{E2}$ は水素原子または置換基を表す。 $n^E$ および $m^E$ は0～5の整数を表す。 $n'$ は0または1を表す。）

（9）（3）におけるオルトメタル化錯体がイリジウム錯体であることを特徴とする（4）、（6）または（8）に記載の発光素子。

（10）少なくとも発光層を含む有機化合物層が高分子化合物を含有することを特徴とする（1）～（4）、（6）、（8）および（9）のいずれかに記載の発光素子。

【手続補正13】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0247

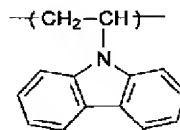
【補正方法】変更

【補正内容】

【0247】

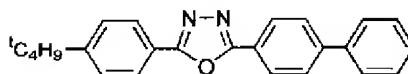
【化130】

PVK

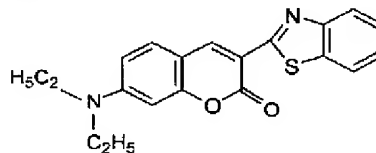


重量平均分子量 23,000  
(ポリスチレン換算)

PBP



クマリン6



【手続補正14】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0250

【補正方法】変更

【補正内容】

【0250】

【表3】

表 3

素子 No.	発光層ホスト高分子	発光層 発光材料	素子作製直後の E L 特性			85℃保存後 E L 特性	
			発光 $\lambda_{\max}$ (nm)	印加電圧 15V での輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	外部量子 効率 (%)	印加電圧 15V での輝度(c d/m <sup>2</sup> )	発光面状*
301(比較例)	ポリビニルカルbazol	K-1	513	500	0.64	385	×
302(本発明)	例示化合物 169	K-1	514	8750	2.8	6950	○
303(本発明)	例示化合物 172	K-1	516	6900	3.2	4920	○
304(本発明)	例示化合物 177	K-1	516	18900	3.5	17500	○
305(本発明)	例示化合物 177	K-2	488	14300	2.9	13200	○
306(本発明)	例示化合物 177	K-40	633	8990	2.2	7600	○
307(本発明)	例示化合物 285	K-1	513	19200	4.6	17650	○
308(本発明)	例示化合物 285	K-2	490	18750	3.2	16900	○
309(本発明)	例示化合物 285	K-40	634	7880	2.8	6940	○
310(本発明)	例示化合物 304	K-1	511	11150	3.3	9380	○
311(本発明)	例示化合物 306	K-1	514	17800	3.6	16900	○
312(本発明)	例示化合物 306	K-2	489	14320	2.9	13000	○
313(本発明)	例示化合物 306	K-40	631	6900	2.2	5800	○

\*○：ダークスポット（未発光部）発生小、×：ダークスポット発生大

フロントページの続き

(51)Int. Cl.<sup>7</sup>  
C08F 226:06)

識別記号

F I

キーワード(参考)

(72)発明者 三島 雅之  
 神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真  
 フィルム株式会社内  
 (72)発明者 田口 敏樹  
 神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真  
 フィルム株式会社内

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB03 EB00  
 4J100 AB07P AB07Q AQ26Q BA31P  
 BC43P BC43Q BC73P BC73Q  
 BC75P CA01 CA04 DA01  
 DA61 JA32